(19) 世界知的所有権機関 国際事務局

(43) 国際公開日 2008年10月9日(09.10.2008)

(10) 国際公開番号 WO 2008/120714 A1

(51) 国際特許分類: **H01L 51/50** (2006.01)

H05B 33/12 (2006.01)

H05B 33/10 (2006.01) (21) 国際出願番号:

PCT/JP2008/056077

(22) 国際出願日:

2008年3月28日(28.03.2008)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

2007年3月29日(29.03.2007) 特願2007-087518

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 大日本 印刷株式会社 (DAI NIPPON PRINTING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目 1番1号 Tokyo (JP).

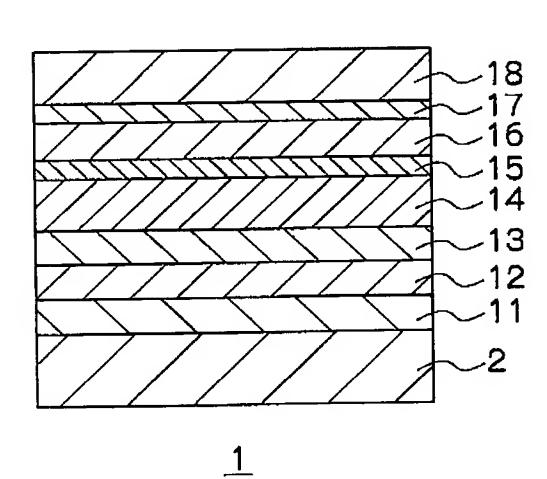
(72) 発明者; および

- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 上野 滋弘(UENO, Shigehiro) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀 町一丁目 1 番 1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 岡田 政人 (OKADA, Masato) [JP/JP]; 〒1628001 東京 都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号大日本印刷株 式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 吉村俊一 (YOSHIMURA, Shunichi); 〒 1020076 東京都千代田区五番町 5 - 6 - 4 0 2 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が 可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM,

/続葉有/

- (54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME
- (54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法

[図1]



(57) Abstract: [PROBLEMS] To provide an organic electroluminescent element, which can enhance the current efficiency for luminescence by optimizing a carrier balance between the number of electrons and the number of holes which are recombined in an organic luminescent layer, and a process for producing the organic electroluminescent element. [MEANS FOR SOLVING PROBLEMS] An organic EL element (1) having an element structure comprising an organic luminescent layer (14) provided between an anode (11) and a cathode (18). The organic luminescent layer (14) comprises at least two host materials and a dopant which is a luminescent compound. The at least two host materials are identical to or substantially identical to each other in the energy value of LUMO (lowest empty orbit), but on the other hand, are different from each other in the energy value of HOMO (highest occupied molecular

orbital). Alternatively, the at least two host materials are identical to or substantially identical to each other in the energy value of HOMO (highest occupied molecular orbital), but on the other hand, are different from each other in the energy value of LUMO (lowest empty orbit). According to the above constitution, the balance of mobility between the electrons and holes can be regulated to solve the above problem of the prior art.

(57) 要約: 【課題】有機発光層で再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する電流効 率を高めた有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法を提供する。【解決手段】陽極11と陰極18と の間に有機発光層14が配置された素子構造を有する有機EL素子1であって、有機発光層14は、LUMO(最 低空軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも 2種のホスト材料又はHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでLUMO(最低空軌道) のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含むように構成し、 ★ 電子と正孔の移動度のバランスを調整して上記課題を解決した。

08/120



KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CII, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IIR, IIU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

明 細 書

有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法 技術分野

[0001] 本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法に関し、更に詳しくは、有機発光層で再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する電流効率を高めた有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法に関する。

背景技術

- [0002] 有機エレクトロルミネセンス素子(以下、有機EL素子ともいう。)は、陽極と陰極との間に有機発光層を挟んだ積層構造を有する面発光素子であり、陽極から注入された正孔と陰極から注入された電子とが発光層内で再結合する際に生じる発光を利用した自発光デバイスである。
- [0003] こうした有機EL素子に関する研究開発は様々な技術課題に対して活発に行われているが、その一つに、電子と正孔の再結合効率を高めること、すなわち、有機発光層で再結合する電子数と正孔数のバランス(キャリアバランス)を最適化させて発光に対する電流効率を高めるための研究開発がある。電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させるための従来技術として、電荷注入層の挿入、電荷輸送層の挿入、電荷阻止層(電荷ブロック層ともいう。)の挿入が知られている。
- [0004] 電荷注入層を挿入する方法は、電子と正孔のうち数が少ない方の電荷を電極から 円滑に注入できるように適切なHOMO(最高被占軌道、Highest Occupied Molecular Orbital)あるいはLUMO(最低空軌道、Lowest Unoccupied Molecular Orbital)を持つ材料層を正孔注入層又は電子注入層として挿入して、有機発光層に注入されるキャリアの数のバランスを最適化して再結合効率を高める方法である。また、電荷輸送層を挿入する方法は、上述した電荷注入層と有機発光層との間に正孔輸送性能又は電子輸送性能を有する材料層を正孔輸送層又は電子輸送層として挿入し、その材料層の厚さを調整することによって、キャリアが有機発光層に到達するまでの時間を制御して有機発光層の正孔移動度と電子移動度との差を補償し、有機発

WO 2008/120714 2 PCT/JP2008/056077

光層での電荷の再結合効率を高める方法である。また、電荷ブロック層を挿入する 方法は、電子と正孔のうち数の多い方の電荷や移動度の高い方の電荷が有機発光 層を突き抜けることを抑制するために適切なHOMOあるいはLUMOを持つ材料層 を正孔ブロック層(正孔阻止層)又は電子ブロック層(電子阻止層)として挿入し、再 結合効率を高める方法である。

- [0005] また、ホスト材料とドーパントとから構成される有機発光層について、ドーパントが発光性化合物と非発光性化合物とで構成され、その非発光性化合物のバンドギャップを発光性化合物のバンドギャップよりも広くして再結合効率を向上させようとしているものも提案されている(例えば特許文献1を参照。)。また、同様のものとして、ホスト材料の蛍光ピーク波長よりも波長が短い第1ドーパントと波長が長い第2ドーパントのうち、第2ドーパントを発光させるように構成した有機EL素子が提案されている(例えば特許文献2を参照)。また、キャリアの移動度をコントロールする方法として、電流促進材料を発光層に加えて低電圧化をはかろうとするものも提案されている(例えば特許文献3を参照。)。
- [0006] 上記のように、再結合効率を高める方法が幾つか提案されているが、通常、有機E L素子をR(赤)G(緑)B(青)フルカラーのディスプレイに適用する際には、正孔阻止 層や電荷輸送層等を挿入すると共に、その正孔阻止層や電荷輸送層等を構成する 材料の種類や最適な膜厚などの素子構成をRGBの各色に対して変化させる必要が あった。
- [0007] ところで、有機EL素子のカラー化技術の1つに、有機発光層を例えばR(赤)G(緑)B(青)等の各色毎に塗り分ける各色塗り分け方式がある。この方式は、各色に発光する発光材料をそれぞれ塗り分けて発光層を形成し、それぞれの発光色でカラー化を実現させているため、カラーフィルターやCCM(カラー・チェンジング・マテリアル)を必須の構成としなくてもR(赤)G(緑)B(青)を高精細に塗り分けることが可能となるので、薄型化やコストダウンが可能で光利用効率に優れたカラー化技術である。この各色塗り分け方式で発光層を形成する方法としては、蒸着法と塗布法が主に採用されている。蒸着法としては、高精細なマスクによる塗り分け蒸着法が挙げられ、塗布法としては、インクジェット法、グラビア法、スプレイ法、フォトリソ法等が挙げられる。

WO 2008/120714 3 PCT/JP2008/056077

[0008] 蒸着法は、積層化や構成材料の高純度化が比較的容易なため、発光駆動寿命や発光効率に優れた発光層を形成することができるが、高コストな形成方法であるという課題があった。その理由は、各色毎の発光材料を所定領域に蒸着するためのアライメント機構をもつ高価な真空蒸着装置や、所定領域に蒸着するための高精細で高価なマスクが必要となること等により、設備投資が嵩んだり歩留まりが低下したりすることが原因であった。一方、塗布法での発光層の形成は、蒸着法で用いる真空蒸着装置と比較して設備投資が安価であり、パネルの大面積化にも対応可能であることから、製造方法としては蒸着法よりも有利である。

特許文献1:特開2003-68466号公報

特許文献2:特開平9-134789号公報

特許文献3:特開2003-68461号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0009] しかしながら、コストメリットに優れた塗布法で各色の有機発光層を塗り分け形成した後に正孔阻止層や電子輸送層等を形成する場合、上記のように、正孔阻止層や電荷輸送層等を構成する材料の種類や最適な膜厚などの素子構成をRGBの各色に対して変化させる必要があるので、各色に対応させた電荷輸送層は高精細なマスクを利用した真空蒸着等で形成する必要があり、工程の増加や歩留まりの低下により塗布法特有のプロセスメリットが活かせないという問題を生じさせていた。
- [0010] また、有機発光層からみて電極側の2色領域以上の層を共通化させて工程を削減 しようとする場合は、各色のうち最も素子特性の低い有機発光層を基準とし、その有 機発光層が必要とする層構成を形成しなければならないので、他の色の有機発光層 の特性が犠牲になるという問題を生じさせていた。
- [0011] また、低分子材料を塗布して有機発光層を形成した場合、その有機発光層は、蒸着法で形成した有機発光層と比べて分子配置や密度などの凝集状態が異なり、それに付随して正孔や電子の移動度も異なるため、蒸着法で形成した有機発光層とは正孔阻止層や電荷輸送層等の構成を変えなければならない場合があった。
- [0012] 本発明は、上記課題を解決するためになされたものであって、その目的は、有機発

WO 2008/120714 4 PCT/JP2008/056077

光層で再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する 電流効率を高めた有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法を提供するこ とにある。また、有機発光層からみて陰極側の層構成をできるだけ共通化することが できる有機EL素子及びその製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

- [0013] 本発明者らは、上記課題解決のための研究を行っている過程で、有機発光層にキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子を添加すると、電子と正孔の移動度のバランスを調整することができることを見出し、さらに検討を加えて本発明を完成させた。
- [0014] すなわち、本発明の第1の観点に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、陽極と 陰極との間に有機発光層が配置された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機発光層は、LUMO(最低空軌道)のエネルギー値が同じ 又は略同じでHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含むことを特徴とする。
- [0015] また、本発明の第2の観点に係る有機エレクトロルミネッセンス素子は、陽極と陰極との間に有機発光層が配置された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、前記有機発光層は、HOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が同じ又は略同じでLUMO(最低空軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含むことを特徴とする。
- [0016] 第1の観点に係る発明と第2の観点に係る発明との違いは、前者がLUMOのエネルギー値が同じ又は略同じでHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料を含むのに対し、後者はHOMOのエネルギー値が同じ又は略同じでLUMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料を含む点で相違するが、両者は有機発光層で再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する電流効率を高めるように作用する点で共通する。この第1及び第2の観点に係る本発明によれば、HOMOとLUMOの一方が同じで他方が異なる少なくとも2種以上のホスト材料を含むので、それらのホスト材料は、有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、電子と正孔の移動度のバランスを

WO 2008/120714 5 PCT/JP2008/056077

調整する。その結果、(1)有機発光層を塗り分け形成した後に正孔阻止層や電荷輸送層等を形成する場合であっても、それらの構成材料の種類や膜厚等をRGBの各色に対して変化させる必要がなく、高精細なマスクを利用した製膜手段を用いなくてもよく、生産性のよい有機EL素子とすることができる。また、(2)有機発光層からみて電極側の2色領域以上の層を共通化させて工程削減を図ることができると共に、一部の色の有機発光層の素子特性を犠牲にすることもない。また、(3)低分子材料を塗布して有機発光層を形成した場合においても、蒸着法で形成した有機発光層とは正孔阻止層や電荷輸送層の構成を変えなくてもよいという効果もある。

- [0017] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記ホスト材料と前記ドーパントとが低分子化合物であることが好ましい。その理由は、中分子化合物や高分子化合物の場合には、共重合等によっていくつかの基が同一分子内に混在するようになるため、分子のコンフォーメーションの違い等によりHOMOやLUMO等のエネルギー準位分布が低分子化合物の場合と比較して大きくなると推測され、ホスト材料の混合によるキャリアのトラップやエネルギー障壁の効果が現れにくい。一方、低分子化合物の場合には、中分子化合物や高分子化合物と比較して構造が単純であるためエネルギー準位の分布が小さく、エネルギー準位の異なる材料を添加した場合の効果が現れやすく、本発明に適用するのに好ましい。さらに、中分子化合物や高分子化合物よりも低分子化合物の方が、一般的に寿命や効率が中分子化合物や高分子化合物の場合に比べて高性能である点も好ましい。
- [0018] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記少なくとも2種のホスト材料のうち、含有量が少ない方のホスト材料は、前記ドーパントの含有量の2倍を超える含有量で含まれるように構成する。実際は発光性ドーパント自身もキャリアのトラップサイトになりうるが、発光性ドーパント濃度を高くすると濃度消光により発光効率が減少するという問題がある。一方、本発明によれば、含有量が少ない方のホスト材料をドーパントの含有量の2倍以上の含有量で含まれるように構成したので、発光性ドーパントによるトラップの影響が軽減でき、さらに発光性のドーパント濃度を最適に保持した状態でキャリアトラップ濃度を主に制御することができる。
- [0019] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記HOMO又はLUM

Oのエネルギー値が同じ又は略同じ少なくとも2種のホスト材料において、該エネルギー値の差が±0.15eVよりも小さく、前記LUMO又はHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料において、該エネルギー値の差が0.15eV以上0.60eV以上であるように構成する。この発明によれば、HOMOとLUMOのうち、エネルギー値が同じ又は略同じ側のエネルギー値の差が±0.15eVよりも小さく、エネルギー値が異なる側のエネルギー値の差が0.15eV以上0.60eV以上であるようにしたので、上記した本発明の効果、すなわちホスト材料が有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、電子と正孔の移動度のバランスを調整するという本発明の効果を顕著に生じさせることができる。

- [0020] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記少なくとも2種のホスト材料のうち、含有量が多い方のホスト材料のみをホスト材料とする素子よりも、前記少なくとも2種のホスト材料を含有する素子の方が、駆動電圧が高電圧化するように構成する。2種のホスト材料が等量含まれている場合は、駆動電圧が低いホストのみをホスト材料とする素子よりも高電圧化する。
- [0021] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機発光層と前記 陰極との間に、正孔阻止層と電子輸送層とがその順に設けられていることが好ましい。この発明によれば、有機発光層と前記陰極との間に正孔阻止層と電子輸送層とを その順に設けた場合において、その正孔阻止層と電荷輸送層の構成材料の種類や 膜厚等をRGBの各色に対して変化させる必要がなく、高精細なマスクを利用した製 膜手段を用いなくてもよく、生産性のよい有機EL素子とすることができる。
- [0022] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記正孔阻止層と前記電子輸送層とが、R(赤)G(緑)B(青)の各色を発光する有機発光層領域のうち2色以上の領域を覆うように形成されていることが好ましい。この発明によれば、有機発光層を構成するR(赤)G(緑)B(青)の各領域のうち2色領域以上を覆うように正孔阻止層と電子輸送層とが形成されているので、各色毎に別々の層を形成する場合に比べてプロセスメリットがある。
- [0023] 上記課題を解決する本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法は、陽極と陰極との間に有機発光層が配置された素子構造を有する有機エレクトロルミネッ

WO 2008/120714 7 PCT/JP2008/056077

センス素子の製造方法であって、前記有機発光層の形成工程は、LUMO(最低空軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料又はHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでLUMO(最低空軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含む有機発光層形成材料を塗布して行うことを特徴とする。

- [0024] この発明によれば、LUMOのエネルギー値が同じ若しくは略同じでHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料又はHOMOのエネルギー値が同じ若しくは略同じでLUMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含む有機発光層形成材料を塗布して有機発光層を形成するので、その有機発光層を構成するホスト材料は、有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、有機発光層で再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する電流効率を高めるように作用する。その結果、この製造方法で得られた有機EL素子は、上記(1)~(3)と同じ作用効果を奏することができる。
- [0025] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、前記有機発 光層と前記陰極との間に、正孔阻止層と電子輸送層とをその順に塗布形成すること が好ましい。
- [0026] 上記本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法において、前記正孔阻止層と前記電子輸送層とを、R(赤)G(緑)B(青)の各色を発光する有機発光層領域のうち2色以上の領域を覆うように塗布形成することが好ましい。 発明の効果
- [0027] 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子及びその製造方法によれば、有機発光層を構成するホスト材料がその有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、電子と正孔の移動度のバランスを調整するので、(1)有機発光層を塗り分け形成した後に正孔阻止層や電荷輸送層等を形成する場合であっても、それらの構成材料の種類や膜厚等をRGBの各色に対して変化させる必要がなく、高精細なマスクを利用した製膜手段を用いなくてもよく、生産性のよい有機EL

素子とすることができ、また、(2)有機発光層からみて電極側の2色領域以上の層を共 通化させて工程削減を図ることができると共に、一部の色の有機発光層の素子特性 を犠牲にすることもなく、また、(3)低分子材料を塗布して有機発光層を形成した場合 においても、蒸着法で形成した有機発光層とは正孔阻止層や電荷輸送層の構成を 変えなくてもよいという効果もある。

[0028] こうした本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、低コストなエリアカラーディスプレイ、マルチカラーディスプレイ、フルカラーディスプレイ等として好ましく実用化できる。

発明を実施するための最良の形態

[0029] 以下、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子(有機EL素子)及びその製造方法の実施の形態について説明するが、本発明は以下の実施形態に限定解釈されるものではない。

[0030] [有機EL素子]

図1は、本発明の有機EL素子の基本的な素子構造を示す模式断面図である。本 発明の有機EL素子1は、陽極11と陰極18との間に有機発光層14が配置された素子構造を有するものであるが、具体的には図1に示すように、基材2上に、陽極11、正孔注入層12、正孔輸送層13、有機発光層14、正孔阻止層15、電子輸送層16、電子注入層17及び陰極18がその順で形成されている形態を例示する。本発明の第1の観点に係る有機EL素子は、有機発光層14が、LUMOのエネルギー値が同じ又は略同じでHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料とドーパントとを含むものである。また、本発明の第2の観点に係る有機EL素子は、有機発光層14が、HOMOのエネルギー値が同じ又は略同じでLUMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料とドーパントとを含むものである。

[0031] 以下に、本発明の有機EL素子が備える構成要素について順次詳しく説明する。

[0032] (基板)

最初に、基板2について説明する。基板2の種類や形状、大きさ、厚さ等の構造は特に限定されるものではなく、有機EL素子の用途や基板上に積層する各層の材質等により適宜決めることができる。例えば、AI等の金属、ガラス、石英又は樹脂等の

各種の材料からなるものを用いることができる。なお、有機発光層14で発光した光を 基板2側から出射させるボトムエミッション構造の有機EL素子の場合には、透明又は 半透明になる材料で基板2が形成されることが好ましいが、有機発光層14で発光し た光を基板2の反対側から出射させるトップエミッション構造の有機EL素子の場合に は、必ずしも透明又は半透明になる材料を用いる必要はなく、不透明材料で基板2 を形成してもよい。

[0033] 特に、有機EL素子の基板として一般的に用いられているものを好ましく用いることができ、用途に応じてフレキシブルな材質や硬質な材質等が選択される。具体的に用いることができる材料としては、例えば、ガラス、石英、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリメタクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリメチルアクリレート、ポリエステル、ポリカーボネート等を挙げることができる。また、基板2の形状としては、枚葉状でも連続状でもよく、具体的には、例えばカード状、フィルム状、ディスク状、チップ状等を挙げることができる。

[0034] (陽極)

陽極11は、図1においては基板2上に設けられており、その形成材料としては、金属、導電性酸化物、導電性高分子等の薄膜が用いられる。具体的には、例えば、ITO(インジウム錫オキサイド)、酸化インジウム、IZO(インジウム亜鉛オキサイド)、SnO2、ZnO等の透明導電膜、金、クロムのような仕事関数の大きな金属、ポリアニリン、ポリアセチレン、ポリアルキルチオフェン誘導体、ポリシラン誘導体のような導電性高分子等を挙げることができる。なお、陽極11が光取り出し側にある場合には、陽極11が透明又は半透明となっていることが好ましいので、ITO(インジウム錫オキサイド)、酸化インジウム、IZO(インジウム亜鉛オキサイド)、SnO2、ZnO等の透明導電材料が好ましく用いられる。

[0035] 陽極11は、真空蒸着、スパッタリング、CVD等の真空プロセスあるいは塗布により 形成することができ、その膜厚は使用する材料等によっても異なるが、例えば10nm ~1000nm程度であることが好ましい。

[0036] (正孔注入層)

正孔注入層12は、本発明においては必須の層ではないが、通常は陽極11上に好

ましく設けられ、陽極11から正孔(ホール)が注入され易いように作用する。正孔注入層12の形成材料としては、前記作用を奏する材料が好ましく用いられ、例えば後述する有機発光層14のところで例示する色素系材料、金属錯体系材料又は高分子系材料や、フェニルアミン系、スターバースト型アミン系、フタロシアニン系、酸化バナジウム、酸化モリブデン、酸化ルテニウム、酸化アルミニウム等の酸化物、アモルファスカーボン、ポリアニリン、ポリチオフェン等の誘導体等、正孔注入層用材料として通常使用されるものを用いることができる。また、正孔注入層の形成材料として市販されている、例えばポリ(3、4)エチレンジオキシチオフェン/ポリスチレンスルホネート(略称PEDOT/PSS、バイエル社製、商品名;Baytron P CH8000、水溶液として市販。)等も使用することができる。

[0037] 正孔注入層12は、真空蒸着、スパッタリング、CVD等の真空プロセスや、プロセスメリットのある塗布法により形成することができる。正孔注入層12の厚さは使用する材料等によっても異なるが、例えば0.5nm~1000nm程度の範囲内であることが好ましい。

[0038] (正孔輸送層)

正孔輸送層13は、木発明においては必須の層ではないが、通常は陽極11上又は正孔注入層12上に好ましく設けられ、陽極11から供給された正孔(ホール)を有機発光層14に輸送するように作用する。また、用いる材料によっては、陰極18から有機発光層14に供給された電子をブロックする電子阻止層(電子ブロック層ともいう。)としても機能させることができる。正孔輸送層13の形成材料としては、例えばアリールアミン誘導体、アントラセン誘導体、カルバゾール誘導体、チオフェン誘導体、フルオレン誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、スピロ化合物等を挙げることができる。アリールアミン誘導体の具体的としては、ビス(N-(1-ナフチル-N-フェニル)ーベンジジン(α-NPD)、N, N'ービス-(3-メチルフェニル)ーN, N'ービス-(フェニル)ーベンジジン(TPD)、コポリ[3, 3'ーヒドロキシーテトラフェニルベンジジン/ジエチレングリコール]カーボネート(PC-TPD-DEG)等を挙げることができる。カルバゾール類の具体例としては、ポリビニルカルバゾール(PVK)等を挙げることができる。チオフェン誘導体類の具体例としては、ポリビニクラージオクチルフルオレニルー2

,7-ジイル)-co-(ビチオフェン)]等を挙げることができる。フルオレン誘導体の具体例としては、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレニルー2,7-ジイル)-co-(4,4'-(N-(4-sec-ブチルフェニル))ジフェニルアミン)](TFB)等を挙げることができる。スピロ化合物の具体例としては、ポリ[(9,9-ジオクチルフルオレニルー2,7-ジイル)-alt-co-(9,9'-スピロービフルオレンー2,7-ジイル)]等を挙げることができる。これらの材料は単独で用いてもよく2種以上を併用してもよい。

- [0039] 正孔輸送層13は、必要に応じてバインダー樹脂や硬化性樹脂や塗布性改良剤などの添加剤を含んでいてもよい。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。また、正孔輸送層13中には、更に、熱及び/又は光硬化性材料を含有することが好ましい。或いは、正孔輸送層13に含まれる正孔輸送性の材料が、熱及び/又は光硬化性官能基を有することが好ましい。ここで、正孔輸送層13に含まれる正孔輸送性の材料とは、正孔輸送層13に含まれる有機発光層ホスト材料又は発光材料、並びに、実質的に正孔輸送層のみに含まれている正孔輸送性材料が包含される。
- [0040] 熱及び/又は光硬化性を有することにより、正孔輸送層13を硬化させることが可能になるため、隣接する有機発光層14を塗布により形成した場合であっても、有機発光層形成用塗布液を塗布する際に正孔輸送層13の構成成分の溶出を低減することができる。正孔輸送層13に含まれる正孔輸送性の材料に導入されている熱及び/又は光硬化性官能基としては、アクリロイル基やメタクリロイル基などのアクリル系の官能基、又はビニル基、ビニレン基、エポキシ基、イソシアネート基、シンナメート基、シンナモイル基、クマリン基、カルバゾール基等を挙げることができる。分子内に上記硬化性の官能基が導入された正孔輸送性の材料としては、具体的には、フルオレン誘導体でビニル基を構造内に持つ、ポリ[(9,9ージオクチルフルオレニルー2,7ージイル)ーaltoーcoー(9,9ージー{5ーペンテニル}ーフルオレニルー2,7ージイル)]や、ポリ[(9,9ージー{5ーペンテニル}ーフルオレニルー2,7ージイル)ーcoー(4,4'ー(Nー(4ーsecーブチルフェニル))ジフェニルアミン)](熱硬化性TFB)を挙げることができる。
- [0041] 更に添加される熱及び/又は光硬化性材料としては、例えばエポキシ樹脂、フェノ

ール樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコーン樹脂、シランカップリング剤;ビニル基、ビニレン基、アクリロイル基、メタクリロイル基等のエチレン性二重結合を分子内に2つ以上有する化合物等を挙げることができる。

[0042] 正孔輸送層13は、上記材料を含有した正孔輸送層形成用塗工液を用いた塗布法により形成することができる。正孔輸送層13の厚さは使用する材料等によっても異なるが、例えば1nm~50nm程度の範囲内であることが好ましい。なお、正孔輸送層用材料は、上記の正孔注入層12内に混ぜてもよいし、後述する有機発光層14内に混ぜてもよい。

[0043] (有機発光層)

有機発光層14は、本発明においては必須の層であり、図1では正孔輸送層13上に設けているが、陽極11上に直接設けてもよいし、正孔注入層12上に設けてもよい。有機発光層14は、再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する電流効率を高めることができるように構成された層であり、HOMOとLUMOの一方が同じで他方が異なる少なくとも2種以上の化合物からなるホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含んでいる。

- [0044] ドーパントは、有機発光層14での主な発光特性を担う発光性化合物であり、低分子系の化合物で発光効率のよいものが好ましく用いられる。そうしたドーパントとしては、例えば、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、ルブレン誘導体、キナクドリン誘導体、スクアリウム誘導体、ポルフィリン誘導体、スチリル系色素、テトラセン誘導体、ピラゾリン誘導体、デカシクレン、フェノキサゾン、キノキサリン誘導体、カルバゾール誘導体、フルオレン誘導体等を挙げることができる。また、これらにスピロ基を導入した化合物も用いることができる。
- [0045] 具体的には、1-tert-ブチルーペリレン(TBPと略す)、クマリン6、ナイルレッド、1,4-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ベンゼン(DPVBiと略す)、1,1,4,4-テトラフェニルー1、3-ブタジエン(TPBと略す)、4、4'-ビス[4-(ジーpートリルアミノ)スチリル]ビフェニル(BDAVBiと略す)等を挙げることができる。これらの材料は単独で用いてもよく2種以上を併用してもよい。また、燐光系のドーパントとして、白金やイリジウム等の重金属イオンを中心に有し、燐光を示す有機金属錯体が使用可能であ

る。具体的には、従来公知の、 $lr(ppy)_3$ 、 $(ppy)_2 lr(acac)$ 、 $lr(BQ)_3$ 、 $(BQ)_2 lr(acac)$ c)、 $lr(THP)_3$ 、 $(THP)_2 lr(acac)$ 、 $lr(BO)_3$ 、 $(BO)_2 (acac)$ 、 $lr(BT)_3$ 、 $(BT)_2 lr(acac)$ 、 $lr(BTP)_3$ 、 $(BTP)_2 lr(acac)$ 、 $lr(BTP)_3$ できる。これらの材料は単独で用いてもよく2種以上を併用してもよい。

- [0046] 後述するホスト材料が中分子系又は高分子系材料である場合には、その中分子系又は高分子系材料の分子構造の中に上記のドーパントが発光基として含まれていてもよい。なお、本願において、「低分子」とは、分子量で70~2000の範囲のものを定義し、「中分子」とは、重量平均分子量で2000~1万の範囲のものを定義し、「高分子」とは、重量平均分子量で1万~100万の範囲のものを定義する。低分子系材料における分子量は、中分子系又は高分子系材料の分子量が分布値であることとは異なり単一値であり、分子構造から決定される。低分子系材料の構造は、一般的に、質量分析法NMR法、IR法、質量分析法などにより決定される。一方、中分子系又は高分子系材料の重量平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)測定を行い、ポリスチレン換算した重量平均分子量によって求めることができる。
- [0047] ドーパントの配合割合(含有量)は、発光色や使用する材料の種類によっても異なるが、例えば、ホスト材料とドーパントの合計重量に対して、重量比でおよそ1~20重量%(重量%は質量%と同義。以下同じ。)、好ましくは1~10重量%の範囲で添加されていることが好ましい。
- [0048] ホスト材料は、有機発光層用に一般的に用いられている材料であれば低分子系材料であっても中分子系又は高分子系材料であっても特に限定されないが、HOMOとLUMOの一方が同じで他方が異なる少なくとも2種以上の化合物で構成されている。詳しくは、(a)LUMOのエネルギー値が同じ又は略同じでHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料、又は、(b)HOMOのエネルギー値が同じ又は略同じでLUMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料が用いられる
- [0049] 本発明は、有機発光層14を構成する基本となるホスト材料とドーパントとを選定した後、正孔と電子のキャリアバランスを考慮して、そのいずれかの電荷(正孔、電子)の移動度を抑制するように、基本となるホスト材料のHOMO又はLUMOのエネルギー

С

値とは異なるエネルギー値を持つ化合物を第2の化合物として配合する。有機発光 層14を構成する少なくとも2種の化合物は、有機発光層内でキャリアトラップあるいは エネルギー障壁となる分子として作用し、電子と正孔の移動度のバランスを調整する ように作用する。プロセス安定性の観点から、好ましくは2種のホスト材料の混合が好 ましいが、3種以上であっても構わない。

- [0050] 図2は、有機EL素子を構成する主要な層の基本的なエネルギーダイアグラムの模式図である。図3は、有機発光層を構成する2種の化合物のHOMOとLUMOの形態を示すエネルギーダイアグラムの模式図であり、図3(A)はHOMOのエネルギー値が異なる化合物を併用した場合を示し、図3(B)はLUMOのエネルギー値が異なる化合物を併用した場合を示している。
- [0051] LUMOのエネルギー値が同じ又は略同じでHOMOのエネルギー値が低い化合物を併用した場合、図3(A)の波線A'に示すように、Aよりも高いエネルギー準位(エネルギーギャップ内側)のA'に正孔がトラップされ、トラップされた正孔が静電反発サイトとして機能して正孔の輸送を抑制するように作用するので、再結合する正孔の移動度を抑制することができる。一方、LUMOのエネルギー値が同じ又は略同じでHOMOのエネルギー値が高い化合物を併用した場合、図3(A)の波線A"に示すように、Aよりも低いエネルギー準位(エネルギーギャップの外側)のA"がエネルギー障壁サイトとなってホッピング伝導の確率を妨げ、あるいは正孔輸送層から発光層への正孔の移動を妨げ、正孔の流れを抑制するように作用するので、再結合する正孔の移動度を抑制することができる。
- [0052] 他方、HOMOのエネルギー値が同じ又は略同じでLUMOのエネルギー値が高い 化合物を併用した場合、図3(B)の波線B'に示すように、Bよりも低いエネルギー準 位(エネルギーギャップの内側)のA'に電子がトラップされ、トラップされた電子が静 電反発サイトとして機能して電子の輸送を抑制するように作用するので、再結合する 電子の移動度を抑制することができる。一方、HOMOのエネルギー値が同じ又は略 同じでLUMOのエネルギー値が低い化合物を併用した場合、図3(B)の波線B"に 示すように、Bよりも高いエネルギー準位(エネルギーギャップの外側)のB"がエネル ギー障壁サイトとなってホッピング伝導の確率を妨げ、あるいは電子輸送層や正孔阻

止層から発光層への電子の移動を妨げ、電子の流れを抑制するように作用するので 、再結合する電子の移動度を抑制することができる。

- [0053] もしLUMOのエネルギー値が異なり、かつHOMOのエネルギー値も異なるホスト 材料を併用した場合には、正孔又は電子のキャリアの移動度の制御ができない、あ るいは、一方のホスト材料のHOMOともう一方のホスト材料のLUMOの相互作用に よりエキサイマーが形成され、発光性ドーパントに良好にエネルギーが移動しない等 の問題が生ずることになる。エキサイマーは、ホスト材料のエネルギーギャップ(Eg) の値の差が大きい場合にも、一方のホスト材料のHOMOともう一方のホスト材料のL UMOが近くなって形成されやすくなるため、2種以上のホスト材料のエネルギーギャップの差は1.00eV以下、好ましくは0.60eV以下であることにより、発光性ドーパントに良好にエネルギーを移動させることができる。
- [0054] 有機発光層14を構成する少なくとも2種の化合物において、値が異なるHOMO又はLUMOのエネルギー値の差は、正孔の移動度と電子の移動度を考慮して設定されるが、通常は、0.15eV以上0.60eV以下の範囲のエネルギー差になるように調整されることが好ましい。また、上記少なくとも2種の化合物の配合割合は、基本となるホスト材料とドーパントとにおけるキャリアバランスに応じて配合量を調整することになる。
- [0055] なお、本明細書において、HOMOあるいはLUMOのエネルギー値が「略同じ」とは、有機発光層14を構成する少なくとも2種の化合物のHOMOあるいはLUMOのエネルギー値の差が±0.15eVより小さい(±0.15未満)ことを示す。
- [0056] したがって、本発明の好ましい態様としては、HOMO又はLUMOのエネルギー値が同じ又は略同じ少なくとも2種のホスト材料において、エネルギー値の差が±0.1 5eVよりも小さく、且つ、LUMO又はHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料において、エネルギー値の差が0.15eV以上0.60eV以下であるように構成することが好ましい。こうした構成により、ホスト材料が有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、電子と正孔の移動度のバランスを調整するという本発明の効果を顕著に生じさせることができる。
- [0057] 低分子系のホスト材料としては、上記のLUMOとHOMOのエネルギー値の関係を

有するものの組み合わせで構成されていれば、蛍光材料及び燐光材料のいずれも 用いることができ、具体的には、色素系材料や金属錯体系材料を挙げることができる

色素系材料としては、例えば、アリールアミン誘導体、アントラセン誘導体、フェニル [0058]アントラセン誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、オリゴチオフェ ン誘導体、カルバゾール誘導体、シクロペンタジエン誘導体、シロール誘導体、ジス チリルベンゼン誘導体、ジスチリルピラジン誘導体、ジスチリルアリーレン誘導体、シ ロール誘導体、スチルベン誘導体、スピロ化合物、チオフェン環化合物、テトラフェニ ルブタジエン誘導体、トリアゾール誘導体、トリフェニルアミン誘導体、トリフマニルアミ ン誘導体、ピラゾロキノリン誘導体、ヒドラゾン誘導体、ピラゾリンダイマー、ピリジン環 化合物、フルオレン誘導体、フェナントロリン類、ペリノン誘導体、ペリレン誘導体等を 挙げることができる。また、これらの2量体や3量体やオリゴマー、2種類以上の誘導 体の化合物も用いることができる。具体的には、トリフェニルアミン誘導体としては、N N'-ビス-(3-メチルフェニル)-N,N'-ビス-(7ェニル)-ベンジジン(TPD)と略す)や、4,4,4ートリス(3ーメチルフェニルフェニルアミノ)トリフェニルアミン(MT DATAと略す)等が挙げられ、アリールアミン類としては、ビス(N-(1-ナフチルー N-フェニル)ベンジジン) ($\alpha-NPD$ と略す)等が挙げられ、オキサジアゾール誘導 体としては、(2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール) (PBDと略す) 等が挙げられ、アントラセン誘導体としては、9,10 ージー2ーナフチルアントラセン(DNAと略す)等が挙げられ、カルバゾール誘導体 としては、4,4-N,N'ージカルバゾールービフェニル(CBPと略す)や、1,4ービス (2, 2-ジフェニルビニル)ベンゼン(DPVBiと略す)等が挙げられ、フェナントロリン 類としては、バソキュプロインや、バソフェナントロリン等が挙げられる。

[0059] 金属錯体系材料としては、例えば、アルミキノリノール錯体、ベンゾキノリノールベリリウム錯体、ベンゾオキサゾール亜鉛錯体、ベンゾチアゾール亜鉛錯体、アゾメチル亜鉛錯体、ポルフィリン亜鉛錯体、ユーロピウム錯体等、あるいは、中心にAI、Zn、Be等の金属又は、Tb、Eu、Dy等の希土類金属を有し、配位子にオキサジアゾール、チアジアゾール、フェニルピリジン、フェニルベンゾイミダール、キノリン構造等を有す

る金属錯体を挙げることができる。具体的には、トリス(8ーキノリノラト)アルミニウム錯体(Alq3と略す)、ビス(2ーメチルー8ーキノリラト)(pーフェニルフェノラート)アルミニウム錯体(BAlqと略す)、トリ(ジベンゾイルメチル)フェナントロリンユーロピウム錯体、ビス(ベンゾキノリノラト)ベリリウム錯体(BeBqと略す)等を挙げることができる。

17

また、有機発光層14は、再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化さ [0060] せて発光に対する電流効率を高めるという本発明の目的に反しない範囲で、各種の 添加材を含んでいてもよい。例えば、発光色や色味調整等を目的としたオリゴマー材 料又はデンドリマー材料の発光材料を含有させてもよいし、電荷輸送材料を含有さ せてもよい。また、発光層形成用塗工液には、粘度を調整するための樹脂材料、熱 又は光等により硬化する材料、又は、発光波長を変化させるための材料を添加しても よい。粘度調整用の樹脂材料としては、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリアリレー ト、ポリエステル等が挙げられる。また、熱又は光等により硬化する材料としては、上 記の発光層形成材料の分子内に硬化性の官能基が導入されたものや、硬化性樹脂 等を使用することができる。例えば、硬化性の官能基としては、アクリロイル基やメタク リロイル基等のアクリル系の官能基、又はビニレン基、エポキシ基、イソシアネート基 等を挙げることができる。硬化性樹脂としては、熱硬化性樹脂であっても光硬化性樹 脂であってもよく、例えばエポキシ樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ポリエステル 樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコーン樹脂、シランカップリング剤等を挙げることができ る。

[0061] なお、ホスト材料と発光性ドーパントの合計重量に対するドーパントの特に好ましい 含有量(重量%)は、少なくとも2種のホスト材料のうち、含有量の少ない方のホスト材料の含有量の2分の1以下であることが好ましい。言い換えれば、少なくとも2種のホスト材料のうち含有量が少ない方のホスト材料の含有量(重量%)が、ドーパントの含有量の2倍以上であることが好ましい。ドーパント濃度を高くすると濃度消光により発光効率は減少するが、含有量が少ない方のホスト材料をドーパントの含有量の2倍以上の含有量で含まれるように構成することにより、発光性のドーパント濃度を最適に保持した状態でキャリアトラップ濃度を制御することができる。

[0062] 有機発光層14の厚さは特に限定されるものではなく、例えば5nm~200nm程度、

好ましくは20nm~100nm程度とすることができる。有機発光層14の厚さが厚すぎる場合には、一定の光出力を得るために大きな印加電圧が必要になって発光効率が悪くなることがあり、有機発光層14の厚さが薄すぎる場合には、膜質が悪化し、発光特性等が改善できないことがある。

[0063] 有機発光層14の形成は、塗布法により行われる。塗布法は、少なくともホスト材料とドーパントを含有した発光層形成用塗工液を例えば正孔輸送層13上に所定のパターンで塗布する方法であり、この方法により、塗布層である有機発光層14が形成される。塗布手段としては、インクジェット法、スプレイ塗布法等の各種の方法を挙げることができる。

[0064] (正孔阻止層)

正孔阻止層15は、本発明においては必須の層ではないが、通常は有機発光層14 上に好ましく設けられ、陽極11から注入された正孔が有機発光層14を突き抜けるの をブロックし、再結合の機会を増すように作用する。正孔阻止層15の形成材料として は、例えば金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、フェナントロリ ン誘導体、シリル化合物、スピロ化合物等が挙げられる。例えば、フェナントロリン類 の具体例としては、バソキュプロイン、バソフェナントロリン等が挙げられ、金属錯体の 具体例としては、ビス(2ーメチルー8ーキノリラト)(pーフェニルフェノラート)アルミニウ ム錯体(BAlq)等が挙げられる。オキサジアゾール誘導体としては、(2ー(4ービフェ ニリル)ー5ー(4ーtertーブチルフェニル)ー1,3,4ーオキサジアゾール)(PBD)等 を挙げることができる。これらの材料は単独で用いてもよいし、2種以上を併用しても よい。

[0065] 正孔阻止層15は、真空蒸着、スパッタリング、CVD等の真空プロセスや、プロセスメリットのある塗布法により形成することができる。正孔阻止層15の厚さは使用する材料等によっても異なるが、例えば1nm~100nm程度の範囲内であることが好ましい

[0066] (電子輸送層)

電子輸送層16は、本発明においては必須の層ではないが、通常は有機発光層14 上又は正孔阻止層15上に好ましく設けられ、陰極18から供給された電子を有機発 光層14に輸送するように作用する。電子輸送層16の形成材料としては、電子を電子注入層17から有機発光層14へ円滑に輸送することができる材料を含有するものであれば特に限定されるものではない。このような電子輸送性を有する材料としては、例えば金属錯体、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、フェナントロリン誘導体、シリル化合物等が挙げられる。例えば、フェナントロリン類の具体例としては、バソキュプロイン、バソフェナントロリン等が挙げられ、金属錯体の具体例としては、トリス(8ーキノリノラト)アルミニウム錯体(Alq₃)等が挙げられる。オキサジアゾール誘導体としては、(2ー(4ービフェニリル)ー5ー(4ーtertーブチルフェニル)ー1、3、4ーオキサジアゾール)(PBD)等が挙げられる。これらの材料は単独で用いてもよく2種以上を併用してもよい。

[0067] 電子輸送層16は、真空蒸着法あるいは上記材料を含有した電子輸送層形成用塗 工液を用いた塗布法により形成される。電子輸送層16の厚さは使用する材料等によっても異なるが、例えば5nm~50nm程度であることが好ましい。なお、電子輸送層 用材料は、後述の電子注入層17内に混ぜてもよいし、上述した有機発光層14内に 混ぜてもよい。

[0068] (電子注人層)

電子注入層17は、本発明においては必須の層ではないが、通常は陰極18に接した態様で陰極18と電子輸送層16との間に好ましく設けられ、陰極18から電子が注入され易いように作用する。電子注入層17の形成材料としては、有機発光層14の発光材料に例示した化合物の他、アルミニウム、フッ化リチウム、ストロンチウム、酸化マグネシウム、フッ化マグネシウム、フッ化ストロンチウム、フッ化カルシウム、フッ化バリウム、酸化アルミニウム、酸化ストロンチウム、カルシウム、ポリメチルメタクリレートポリスチレンスルホン酸ナトリウム、リチウム、セシウム、フッ化セシウム等のようにアルカリ金属類、及びアルカリ金属類のハロゲン化物、アルカリ金属の有機錯体等を挙げることができる。

[0069] 電子注入層17は、真空蒸着、スパッタリング、CVD等の真空プロセスや、塗布法により形成される。電子注入層17の厚さは使用する材料等によっても異なるが、例えば5nm~30nm程度であることが好ましい。

WO 2008/120714 20 PCT/JP2008/056077

[0070] (陰極)

陰極18は、図1においては電子注入層17上に設けられた必須のものであり、その形成材料としては、金属、導電性酸化物、導電性高分子等の薄膜が用いられる。具体的には、例えば、アルミ、銀等の単体金属、MgAg等のマグネシウム合金、AlLi、AlCa、AlMg等のアルミニウム合金、Li、Caをはじめとするアルカリ金属類、それらアルカリ金属類の合金のような仕事関数の小さな金属等を挙げることができる。陰極18が光取り出し側にある場合には、陰極18が透明又は半透明となっていることが好ましいので、ITO(インジウム錫オキサイド)、酸化インジウム、IZO(インジウム亜鉛オキサイド)、SnO₂、ZnO等の透明導電材料が好ましく用いられる。

- [0071] 陰極18は、上述した陽極11の場合と同様、真空蒸着、スパッタリング、CVD等の 真空プロセスあるいは塗布により形成され、その膜厚は使用する材料等によっても異 なるが、例えば10nm~1000nm程度であることが好ましい。なお、図1に示すように 、電子注入層17等の有機化合物層上に陰極18を成膜する場合は、陰極成膜時に 有機化合物層に加わるダメージを軽減するための保護層を設けてもよい。
- [0072] 以上のようにして図1に例示する有機EL素子1が構成されるが、上述した正孔注入 層12、正孔輸送層13、有機発光層14、正孔阻止層15、電子輸送層16、電子注入 層17の中には、必要に応じてオリゴマー材料又はデンドリマー材料の発光材料若し くは電荷輸送材料を色味補正等の目的で含有させてもよい。
- [0073] こうした本発明の有機EL素子1は、HOMOとLUMOの一方が同じで他方が異なる少なくとも2種以上のホスト材料を含むので、それらのホスト材料は、有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、電子と正孔の移動度のバランスを調整する。その結果、(1)有機発光層を塗り分け形成した後に正孔阻止層や電荷輸送層等を形成する場合であっても、それらの構成材料の種類や膜厚等をRGBの各色に対して変化させる必要がなく、高精細なマスクを利用した製膜手段を用いなくてもよく、生産性のよい有機EL素子とすることができる。また、(2)有機発光層からみて電極側の2色領域以上の層を共通化させて工程削減を図ることができると共に、一部の色の有機発光層の素子特性を犠牲にすることもない。また、(3)低分子材料を塗布して有機発光層を形成した場合においても、蒸着法で形成した有機

発光層とは正孔阻止層や電荷輸送層の構成を変えなくてもよいという効果もある。

[0074] (有機EL素子の具体的形態)

図4~図7は、本発明の有機EL素子のRGBの各形態を示す模式断面図である。 詳しくは、図4は、有機発光層14を構成するR(赤)G(緑)B(青)等の各領域が隔壁1 9によって仕切られているが、各色の有機発光層14のキャリアバランスを調整した結果、正孔阻止層15と電子輸送層16等をR(赤)G(緑)B(青)等の各領域について共通して覆うように設けた形態を示している。また、図5は、有機発光層14を構成するR(赤)G(緑)B(青)等の各領域が隔壁19によって仕切られているが、3色のうちG(緑)B(青)の有機発光層14のキャリアバランスを調整した結果、正孔阻止層15と電子輸送層16等をG(緑)B(青)の2領域について共通して覆うように設けた形態を示している。

- [0075] 隔壁19は、SiO₂等の無機材料や、レジスト等の有機高分子材料からなるものであり、図4~図7に示す形態例においては有機発光層形成前にあらかじめ正孔輸送層13上に形成される。その後、図4においては各色毎の有機発光層14は、隔壁19により塗布領域が画定されながら有機発光層形成用塗布液によって塗布形成される。一方、図5においては各色毎の有機発光層14は、隔壁19により塗布領域が画定されながら有機発光層形成用塗布液によって塗布形成され、その後、R(赤)領域と、G(緑)B(青)領域と分かれて、正孔阻止層15と電子輸送層16が隔壁19により塗布領域が画定されながら塗布又は蒸着によって形成される。こうした形態は、高精細ディスプレイのように、画素が小さいものに好ましく適用される。
- [0076] 一方、図6は、有機発光層14を構成するR(赤)G(緑)B(青)等の各領域が隔壁19を設けずに形成されたものであり、正孔阻止層15や電子輸送層16等は、図4と同様に各色の有機発光層14のキャリアバランスを調整した結果、R(赤)G(緑)B(青)等の各領域を共通して覆うように設けられた形態を示している。こうした形態は、各色の領域が比較的大きいエリアカラー形態の大面積の電飾用表示パネル等に好ましく適用され、従来技術のような蒸着法では困難であった大面積形態下での有機発光層膜厚の面内均一性を塗布法により容易にし、発光特性を改善することができるというメリットがある。なお、有機発光層14を構成する色領域は、代表的にはR(赤)G(緑)

WO 2008/120714 22 PCT/JP2008/056077

B(青)であるが、それ以外であってもよく、例えば図6に示すような電飾用表示装置の場合には、その他の固定色を発光することができる有機発光層としてもよいので、白、黒、その他のカラー色からなる有機発光層を任意に形成することができる。

- [0077] また、図7は、有機発光層14を構成するR(赤)G(緑)B(青)等の各領域が隔壁19によって仕切られている形態であると共に、さらに3色のうちG(緑)B(青)の有機発光層14のキャリアバランスを調整した結果、正孔阻止層15がG(緑と)B(青)の2色領域を覆うように同一の材料で形成されている形態を示している。なお、R(赤)の領域上には正孔阻止層15が設けられておらず、有機発光層14上に直接電子輸送層16が設けられている素子構造である。こうした形態は、RのみがG、Bと異なるホスト材料を用いている場合に適用してもよい。
- [0078] 正孔阻止層15は、図7では、R(赤)G(緑)B(青)等の各領域のうちG(緑と)B(青)の2色領域を覆うように同一の材料で形成されており、また、図4及び図6では、R(赤)G(緑)B(青)等の各領域のうちR(赤)G(緑と)B(青)の3色領域を覆うように同一の材料で形成されているが、正孔阻止層15を3色の有機発光層14上の全てに共通して設けるか、2色の有機発光層14上に設けるか、各色毎に異なる低分子材料等からなる正孔阻止層15を設けるかは、有機発光層14の色味との関係で任意に選択される。しかし、製造コスト等の観点からは、できるだけ同じ材料からなる正孔阻止層15を各色上に共通して設けることが好ましい。
- [0079] 図8は、各色の有機発光層上に形成した正孔阻止層を平面視した形態を示す模式 平面図である。図8(A)は、RGBの3色領域を覆うように正孔阻止層15を形成した例であり、図8(B)は、2色領域を覆うように正孔阻止層15を形成した例であり、図8(C)は、単色領域を覆うように正孔阻止層15を形成した例である。いずれの場合においても、各色の有機発光層14は、所定の区画内に寸法精度よく形成されていることが必要であるのに対し、正孔阻止層15は有機発光層14よりも広くはみ出した「蒸着しろ」又は「塗り重ねしろ」が存在する形態で形成されていればよく、その形成精度も厳格である必要はない。そのため、従来のようなアライメント機構をもつ高価な真空蒸着装置や、所定領域に蒸着するための高精細で高価なマスクが必要となることはなく、設備投資が嵩んだり歩留まりが低下したりすることはない。なお、塗り重ねにより正孔

阻止層15を形成する場合には、コスト的に極めて有利であり、しかも、その形態においても、各色の有機発光層14よりも広くはみ出した形態で形成されている場合が多い。

[0080] [有機EL素子の製造方法]

次に、有機EL素子の製造方法について説明する。本発明の有機EL素子の製造方法は、上述したように、陽極11と陰極18との間に有機発光層14が配置された素子構造を有する有機EL素子1の製造方法である。本発明の特徴は、有機発光層14の形成工程が、LUMO(最低空軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料又はHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでLUMO(最低空軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含む有機発光層形成材料を塗布して行うことにある。

[0081] 有機発光層14の形成の詳細については、上記の有機EL素子の素子構造の説明 欄で説明したとおりであるが、有機発光層14を、設備投資が安価でパネルの大面積 化にも対応可能な塗布法で形成し、その有機発光層14上に形成する正孔阻止層1 5や電子輸送層16を、R(赤)G(緑)B(青)の各色を発光する有機発光層領域のうち 2色以上の領域を覆うように塗布形成することが生産性の点で好ましく、従来の方法 に比べて低コストで製造プロセスが容易な有機EL素子の製造方法を提供することができる。こうした方法によって得られた有機EL素子において、有機発光層14を構成するホスト材料は、有機発光層内でキャリアトラップあるいはエネルギー障壁となる分子として作用し、有機発光層14で再結合する電子数と正孔数のキャリアバランスを最適化させて発光に対する電流効率を高めるように作用する。その結果、この製造方法で得られた有機EL素子は、上記と同じ作用効果を奏することができる。

実施例

- [0082] 以下に、実施例と比較例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は 以下の実施例に限定解釈されるものではない。なお、以下の実施例において行った 評価方法は以下のとおりである。
- [0083] (1)HOMOの測定:本発明での最高被占軌道(HOMO)の値は、光電子分光装

置AC-1(理研計器製)を用いて測定した仕事関数の値を適用した。測定は、洗浄済みのITO付きガラス基板(三容真空社製)上に、測定しようとする材料で形成した層を単層として形成し、前記の光電子分光装置AC-1で光電子が放出されるエネルギー値で決定した。測定条件としては、50nWの光量で0.05eV刻みで行った。

[0084] (2)LUMOの測定:本発明での最低空軌道(LUMO)の値は、光学吸収スペクトルのエッジの値からエネルギーギャップEgを算出し、Egと前記のようにして得られた HOMOとの差をLUMOの値と決定した。吸収スペクトルは、洗浄済みの石英基板上に、測定しようとする材料で形成した層を単層として形成し、この薄膜付基板とリファレンスの石英基板との光学吸収の差を、UV-3100PC(日立製)を用いて測定した。

[0085] (3)膜厚の測定

本発明で記述される各層の厚さは、特に記載がない限り、洗浄済みのITO付きガラス基板(三容真空社製)上へ各層を単膜で形成し、作製した段差を測定することによって決定した。 膜厚測定には、プローブ顕微鏡(エスアイアイ・ナノテクノロジー(株)製、Nanopics1000)を用いた。

- [0086] (4)有機EL素子の電流効率と電力効率:実施例において作製された有機EL素子の電流効率と寿命特性を評価した。電流効率と電力効率は、電流一電圧一輝度(IーVーL)測定により算出した。IーVーL測定は、陰極を接地して陽極に正の直流電圧を100mV刻みで走査(1sec. / div.)して印加し、各電圧における電流と輝度を記録して行った。輝度はトプコン社製輝度計BM-8を用いて測定した。得られた結果をもとに、発光効率(cd/A)は発光面積と電流と輝度から計算して算出した。
- [0087] (5) 色度の測定: 色度は、 ΔE94色差色 (CIE 1994) で評価した。 色度は、トプコン社製分光放射計SR-2を用いて有機EL素子の発光スペクトルを測定し、上記装置で計算して求めた。

[0088] (実施例1)

ガラス基板の上に透明陽極、正孔注入層、正孔輸送層、有機発光層、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層、陰極の順番に製膜して積層し、最後に封止して有機EL素子を作製した。透明陽極と正孔注入層以外は、水分濃度0.1ppm以下、酸素濃

WO 2008/120714 25 PCT/JP2008/056077

度0.1ppm以下の窒素置換グローブボックス内で作業を行った。

- [0089] まず、透明陽極として酸化インジウム錫(ITO)の薄膜(厚さ:150nm)を用いた。IT O付ガラス基板(三容真空社製)をストリップ状にパターン形成した。パターン形成されたITO基板を、中性洗剤、超純水の順番に超音波洗浄し、UVオゾン処理を施した。
- [0090] 次に、洗浄された陽極の上に、正孔注入層としてポリ(3,4ーエチレンジオキシチオフェン)ーポリスチレンスルホン酸(PEDOTーPSSと略す)薄膜(厚さ:20nm)を形成した。PEDOTーPSS薄膜は、PEDOTーPSS水溶液を大気中でスピンコート法により塗布して作製した。PEDOTーPSS薄膜を製膜した後、水分を蒸発させるために大気中でホットプレートを用いて乾燥させた。次に、作製した正孔注入層の上に、正孔輸送層としてポリ[(9,9ージー{5-ペンテニル}ーフルオレニルー2,7ージイル)ーでのー(4,4'ー(Nー(4ーsecーブチルフェニル))ジフェニルアミン)](硬化性TFBと略す:アメリカン・ダイ・ソース社製)を用いた薄膜(厚さ:20nm)を形成した。この正孔輸送層は、正孔輸送層形成用塗工液として、キシレンに溶解させた溶液を用い、グローブボックス内でスピンコート法により塗布して製膜し、その後、ホットプレートを用いて熱硬化させた。
- [0091] 次に、作製した正孔輸送層の上に、有機発光層として、4,4'ービス[4ー(ジーpートリルアミノ)スチリル]ピフェニル(BPAVBiと略す)を発光性ドーパントとして含有した、N,N'ービスー(3ーメチルフェニル)ーN,N'ービスー(フェニル)ーベンジジン(TPDと略す)と4,4',4''ートリス[2ーナフチルフェニルー1ーフェニルアミノ]トリフェニルアミン(2ーTNATAと略す)の混合薄膜(厚さ:40nm)を形成した。有機発光層形成用塗工液は、トルエンにTPDと2ーTNATAとBPAVBiの重量比が9:1:1(ホスト材料:ドーパント=10:1)になるように溶解させて作製した。有機発光層は、この溶液をグローブボックス内でスピンコート法により塗布して製膜した。有機発光層を製膜した後、トルエンを蒸発させるためにグローブボックス内でホットプレートを用いて乾燥させた。なお、TPDのHOMO準位は5.29eVでLUMO準位は2.16eVであり、2ーTNATAのHOMO準位は5.13eVでLUMO準位は2.15eVである。これらの値から、ΔΕ は0.01eVで、ΔΕ は0.16eVで、ΔΕgは0.15eVと算出

される。

- [0092] 次に、作製した有機発光層の上に、正孔阻止層として、ビス(2ーメチルー8ーキノリラト) (pーフェニルフェノラート) アルミニウム錯体(BAlqと略す) からなる薄膜(厚さ:10nm)を、真空中(圧力:1×10⁻⁴Pa)で抵抗加熱蒸着法により製膜した。次に、作製した正孔阻止層の上に、電子輸送層として、トリス(8ーキノリノラト) アルミニウム錯体(Alq3) からなる薄膜(厚さ:20nm)を、真空中(圧力:1×10⁻⁴Pa)で抵抗加熱蒸着法により製膜した。次に、作製した電子輸送層の上に、電子注入層としてLiF膜(厚さ:0.5nm)を、陰極としてAl膜(厚さ:120nm)を、真空中(圧力:1×10⁻⁴Pa)で抵抗加熱蒸着法により順次製膜した。最後に、陰極を形成した後、グローブボックス内にて無アルカリガラスとUV硬化型エポキシ接着剤を用いて封止し、実施例1の有機EL素子を作製した。
- [0093] この有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。なお、発光スペクトルの測定結果からは、BPAVBi以外の他の材料からの発光スペクトルも確認されたが、BPAVBiに帰属される発光スペクトルのピーク値に対して、輝度値で1/5以下と無視できるほど小さかった。したがって、以下においては、発光性ドーパントの発光スペクトルに対して、他の成分の輝度が1/5以下である場合は、「発光ドーパントである(BPAVBi)が主に発光した」と表現する。

[0094] (実施例2~6)

実施例1において、有機発光層を構成するTPDと2-TNATAの重量比を表1に示すように8:2~1:9(ホスト材料:ドーパント=10:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例2~6の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成するBPAVBiの含量及びTPDと2-TNATAに対する重量比は実施例1と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。

[0095] (比較例1,2)

実施例1において、有機発光層を構成するTPDと2-TNATAの重量比を表1に示すように10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=10:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして比較例1,2の有機EL

素子を作製した。なお、有機発光層を構成するBPAVBiの含量及びTPDと2-TN ATAに対する重量比は実施例1と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。

[0096] (実施例7)

実施例1において、正孔阻止層としてBALq薄膜(厚さ:10nm)の代わりに2,9-ジメチルー4,7ージフェニルー1,10ーフェナントロリン(BCPと略す)薄膜(厚さ:10 nm)を形成し、電子輸送層であるAlq3薄膜を厚さ20nmの代わりに厚さ15nmとして形成した他は、実施例1と同様にして実施例7の有機EL素子を作製した。なお、正孔阻止層であるBCP薄膜は、真空中(圧力:1×10⁻⁴Pa)で抵抗加熱蒸着法により製膜した。この有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。

[0097] (実施例8、比較例3, 4)

実施例7において、有機発光層を構成するTPDと2-TNATAの重量比を表2に示すように2:8、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=10:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例8、比較例3、4の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成するBPAVBiの含量及びTPDと2-TNATAに対する重量比は実施例7と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。

[0098] (実施例9)

実施例1において、有機発光層として、TPDと2-TNATAとBPAVBiの混合薄膜 (厚さ:40nm)の代わりに、4,4-N,N'ージカルバゾールービフェニル(CBPと略す)と4,4'ービス(9ーカルバゾール)2,2'ージメチルービフェニル(CDBPと略す)とイリジウム(III)ビス(2-フェニリルピリジネートーN,C2'アセチルアセトネート)(Ir(ppy)2acacと略す)の混合薄膜(厚さ:40nm)を形成した他は、実施例1と同様にして実施例9の有機EL素子を作製した。有機発光層形成用塗工液として、トルエンにCBPとCDBPとIr(ppy)2acacの重量比が8:2:1(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用い、この溶液をグローブボックス内でスピンコート法により塗布して有機発光層を製膜した。有機発光層を製膜した後、トルエンを蒸発させるた

めにグローブボックス内でホットプレートを用いて乾燥させた。なお、CBPのHOMO準位は5.94eVでLUMO準位は2.56eVであり、CDBPのHOMO準位は5.90eVでLUMO準位は2.39eVである。これらの値から、 ΔE_{HOMO} は0.04eVで、 ΔE_{LUMO} は0.17eVで、 ΔE_{BUOMO} は0.13eVと算出される。

[0099] (実施例10,11及び比較例5,6)

実施例9において、有機発光層を構成するCBPとCDBPの重量比を表3に示すように5:5、2:8、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例10,11及び比較例5,6の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成するIr(ppy)2acacの含量及びCBPとCDBPに対する重量比は実施例9と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるIr(ppy)2acacが主に発光し、緑色に発光した。

[0100] (実施例12)

実施例9において、正孔阻止層としてBALq薄膜(厚さ:10nm)の代わりに2,9-ジメチルー4,7ージフェニルー1,10ーフェナントロリン(BCPと略す)薄膜(厚さ:10 nm)を形成し、電子輸送層であるAlq3薄膜を厚さ20nmの代わりに厚さ15nmとして形成した他は、実施例9と同様にして実施例12の有機EL素子を作製した。なお、BCPは、真空中(圧力:1×10⁻⁴Pa)で抵抗加熱蒸着法により製膜した。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるIr(ppy)2acacが主に発光し、緑色に発光した。

[0101] (実施例13,14及び比較例7,8)

実施例12において、有機発光層を構成するCBPとCDBPの重量比を表4に示すように5:5、2:8、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例13、14及び比較例7、8の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成するIr(ppy)2acacの含量及びCBPとCDBPに対する重量比は実施例12と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるIr(ppy)2acacが主に発光し、緑色に発光した。

[0102] (実施例15)

実施例1において、有機発光層として、TPDと2-TNATAとBPAVBiの混合薄膜

(厚さ:40nm)の代わりに、Ir(ppy)3を発光性ドーパントとして含有した、CBPと3ー(4ービフェニリル)ー4ーフェニルー5ーtertーブチルフェニルー1, 2, 4ートリアゾール(TAZと略す)のホスト材料からなる混合薄膜(厚さ:40nm)を形成した。さらに、BAlqからなる正孔阻止層は形成せず、上記有機発光層上に電子輸送層としてAlq3薄膜(厚さ:30nm)を抵抗加熱蒸着法で形成した他は、実施例1と同様にして実施例15の有機EL素子を作製した。有機発光層形成塗工液として、トルエンにCBPとTAZとIr(ppy)。の重量比が8:2:0.5(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用い、上記混合薄膜を作製した。この有機EL素子は、発光性ドーパントであるIr(ppy)。が主に発光し、緑色に発光した。なお、CBPのHOMO準位は5.94eVで、LUMO準位は2.56eVであり、TAZのHOMO準位は5.82eVで、LUMO準位は2.23eVであった。これらの値から、 ΔE_{HOMO} は0.12eVで、 ΔE_{LUMO} は0.33eVで、 ΔE Egは0.21eVと算出される。

[0103] (実施例16,17及び比較例9,10)

実施例15において、有機発光層を構成するCBPとTAZの重量比を表5に示すように、5:5、2:8、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例16,17及び比較例9,10の有機EL素子を作製した。有機発光層を構成するIr(ppy)。の含有量及びCBPとTAZに対する重量比は実施例15と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるIr(ppy)。が主に発光し、緑色に発光した。

[0104] (実施例18)

実施例7において、有機発光層として、発光性ドーパントであるBPAVBiに代えてI $r(piq)_3$ を用い、ホスト材料であるTPDと2ーTNATAに代えてBAlqとCDBPを用いて混合薄膜(厚さ:40nm)を形成した他は、実施例7と同様にして実施例18の有機E L素子を作製した。有機発光層形成塗工液として、1,2ージクロロエタンにBAlqとC DBPと $Ir(piq)_3$ が8:2:0.5(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用い、上記混合薄膜を作製した。この有機EL素子は、発光性ドーパントである $Ir(piq)_3$ が主に発光し、赤色に発光した。なお、BAlqのHOMO準位は5.78eVで、LUMO準位は2.83eVであり、CDBPのHOMO準位は5.90eVで、LUMO

準位は2.39eVであった。これらの値から、 ΔE_{HOMO} は0.12eVで、 ΔE_{LUMO} は0.4 4eVで、 ΔE_{B} は0.32eVと算出される。

[0105] (実施例19,20及び比較例11,12)

実施例18において、有機発光層を構成するBAIqとCDBPの重量比を表6に示すように、5:5、2:8、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例19.20及び比較例11,12の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成するIr(piq)の含有量及びBAIqとCDBPに対する重量比は実施例18と同じにした。これらの素子は、発光性ドーパントであるIr(piq)が主に発光し、赤色に発光した。

[0106] (比較例13)

実施例18において、有機発光層を構成するCDBPの代わりに α -NPDを用いた他は、実施例18と同様にして比較例13の有機EL素子を作製した。この有機EL素子は、発光性ドーパントである $\mathrm{Ir}(\mathrm{piq})_3$ が主に発光し、赤色に発光した。なお、BAlqのHOMO準位は5.78eVで、LUMO準位は2.83eVであり、 α -NPDのHOMO準位は5.42eVで、LUMO準位は2.42eVであった。これらの値から、 ΔE_{HOMO} は0.36eVで、 ΔE_{LUMO} は0.41eVで、 ΔE_{gld} 0.05eVと算出される。

[0107] (比較例14~17)

比較例13において、有機発光層を構成するBAlqと α -NPDの重量比を表7に示すように、5:5、2:8、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、比較例13と同様にして比較例14~17の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成する $Ir(piq)_3$ の含有量及びBAlqと α -NPDに対する重量比は比較例13と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントである $Ir(piq)_3$ が主に発光し、赤色に発光した。

[0108] (実施例21)

実施例1において、有機発光層として、TPDと2-TNATAとBPAVBiの混合薄膜(厚さ:40nm)の代わりに、ルブレンを発光性ドーパントとして含有した、TPDとPVK(分子量Mw:28,385)のホスト材料からなる混合薄膜(厚さ:40nm)を形成した他は、実施例1と同様にして実施例21の有機EL素子を作製した。有機発光層形成塗

工液として、トルエンとジクロロエタンの混合溶剤(重量比1:1)に、TPDとPVKとルブレンが9.5:0.5:0.5(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用い、上記混合薄膜を作製した。この有機EL素子は、発光性ドーパントであるルブレンが主に発光し、黄色に発光した。なお、TPDのHOMO準位は5.29eVで、LUMO準位は2.16eVであり、PVKのHOMO準位は5.68eVで、LUMO準位は2.19eVであった。これらの値から、 ΔE_{HOMO} は0.39eVで、 ΔE_{LUMO} は0.03eVで、 ΔE_{LUMO} は0.03eVで、 ΔE_{LUMO} は0.36eVと算出される。

[0109] (実施例22~24及び比較例18,19)

実施例21において、有機発光層を構成するTPDとPVKの重量比を表8に示すように、8:2、2:8、0.5:9.5、10:0、0:10(ホスト材料:ドーパント=20:1)になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例21と同様にして実施例22~24及び比較例18、19の有機EL素子を作製した。なお、有機発光層を構成するルブレンの含有量及びTPDとPVKに対する重量比は実施例21と同じにした。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるルブレンが主に発光し、黄色に発光した。

[0110] (実施例25~28及び比較例20)

実施例1において、有機発光層を構成するTPDとTNATAとBPAVBiの重量比を表9に示すように、9.5:0.5:0.5、9:1:0.5、8.5:1.5:0.5、8:2:0.5、10:0:0:0.5になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例25~28及び比較例20の有機EL素子を作製した。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。

[0111] (実施例29~32及び比較例21)

実施例1において、有機発光層を構成するTPDとTNATAとBPAVBiの重量比を表9に示すように、9.5:0.5:2、9:1:2、8.5:1.5:2、8:2:2、10:0:2になるように溶解させた溶液を用いて有機発光層を作製した他は、実施例1と同様にして実施例29~32及び比較例21の有機EL素子を作製した。これらの有機EL素子は、発光性ドーパントであるBPAVBiが主に発光し、青色に発光した。

[0112] (評価結果)

[0113] [表1]

表 1

| 衣工 | | | | |
|----------|------------|------|--------|--------|
| | TPD: TNATA | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| <u> </u> | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例1 | 10:1 | 7. 1 | 1. 9 | 0.8 |
| 実施例1 | 9:1 | 9.6 | 2. 9 | 0.9 |
| 実施例 2 | 8:2 | 9. 1 | 2.8 | 1.0 |
| 実施例3 | 6:4 | 8.6 | 2.4 | 0.9 |
| 実施例4 | 4:6 | 8.3 | 1.8 | 0.7 |
| 実施例 5 | 2:8 | 7.8 | 1.8 | 0.7 |
| 実施例 6 | 1:9 | 7.6 | 1.6 | 0.7 |
| 比較例2 | 0:10 | 7.6 | 1.4 | 0.6 |

*) 20mA/cm²駆動時

[0114] [表2]

表 2

| 32 4 | | | | |
|------|------------|------|--------|-------------|
| | TPD: TNATA | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例3 | 1.0:0 | 4. 5 | 1.6 | 1. 1 |
| 実施例7 | 8:2 | 5. 9 | 1.8 | 1.0 |
| 実施例8 | 2:8 | 5. 7 | 1. 2 | 0.7 |
| 比較例4 | 0:10 | 5.6 | 1. 2 | 0.7 |

^{*) 20}mA/cm²駆動時

[0115] [表3]

表 3

| 衣る | | | | · · · · · · · · · · · · · · · · · · · |
|-------|-----------|------|--------|---------------------------------------|
| | CBP: CDBP | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例 5 | 10:0 | 6. 7 | 3. 9 | 1.8 |
| 実施例9 | 8:2 | 7.8 | 5. 1 | 2. 1 |
| 実施例10 | 5 : 5 | 8.5 | 4.8 | 1.8 |
| 実施例11 | 2:8 | 9.9 | 8. 7 | 2.8 |
| 比較例6 | 0:10 | 8. 2 | 3. 7 | 1.4 |

*) 20mA/cm²駆動時

[0116] [表4]

表 4

| 衣 4 | | | <u> </u> | · |
|-------|------------|------|----------|--------|
| | CBP : CDBP | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例7 | 10:0 | 7.9 | 3. 9 | 1.6 |
| 実施例12 | 8:2 | 8. 5 | 5.8 | 2. 1 |
| 実施例13 | 5 : 5 | 8.8 | 3. 5 | 1. 2 |
| 実施例14 | 2:8 | 8. 7 | 3. 1 | 1. 1 |
| 比較例8 | 0:10 | 8. 5 | 3.3 | 1. 2 |

*) 20mA/cm²駆動時

- [0117] 表1に示した実施例1~6及び比較例1,2の結果より、LUMOのエネルギー値が同等(ΔΕ HOMO) = 0.01eV<0.15eV)でHOMOのエネルギー値が異なる(ΔΕ LUM = 0.16eV>0.15eV)ように構成されたTPDとTNATAの混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子では、TPDをホスト材料とした有機発光層を持つ有機EL素子(比較例1)やTNATAをホスト材料とした有機発光層を持つ有機EL素子(比較例2)と比較して、高電圧化していることが分かる。すなわち、2種のホスト材料のうち、含有量が多い方のホスト材料のみをホスト材料とする有機EL素子よりも、2種のホスト材料を含有する有機EL素子の方が、駆動電圧が高電圧化するということができる。この結果より、ホスト材料としてHOMOのエネルギー値が異なる材料を混合させることにより、互いの材料がトラップサイトを形成する、あるいはエネルギー障壁となって、有機発光層におけるホールの移動度を低下させたものと考えることができる。ホールの移動度を調整することにより、再結合効率が高くなり、実施例2では2.8cd/Aに高効率化していることが分かる。
- [0118] 表2に示した実施例7,8及び比較例3,4の結果より、正孔阻止層がBAlqではなくBCPの場合であっても、TPDとTNATAを混合させると高電圧化していることが分かる。最適値はBAlqの場合と異なるが、実施例7では1.8cd/Aに高効率化していることが分かる。
- [0119] 表3に示した実施例9~11及び比較例5,6の結果より、HOMOのエネルギー値が同等($\Delta E_{HOMO} = 0.04 eV < 0.15 eV$)でLUMOのエネルギー値が異なる($\Delta E_{LUM} = 0.17 eV > 0.15 eV$)ように構成されたCBPとCDBPの混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子では、CBPをホスト材料とした有機

発光層を持つ有機EL素子(比較例5)やCDBPをホストと材料した有機発光層を持 つ有機EL素子(比較例6)と比較して、高電圧化していることが分かる。この結果より 、ホスト材料としてLUMOのエネルギー値が異なる材料を混合させることにより、互い の材料がトラップサイトを形成する、あるいはエネルギー障壁となって、有機発光層に おける電子の移動度を低下させたものと考えることができる。電子の移動度を調整す ることにより再結合効率が高くなり、実施例11では8.7cd/Aに高効率化しているこ とが分かる。

表4に示した実施例12~14及び比較例7,8の結果より、正孔阻止層がBAlqでは [0120]なくBCPの場合であっても、CBPとCDBPの混合薄膜を混合させると高電圧化して いることが分かる。最適値はBAlqの場合と異なるが、実施例12では5.8cd/Aに高 効率化していることが分かる。

[0121] [表5]

まら

| 表 5 | | | | |
|-------|----------|------|--------|--------|
| | CBP: TAZ | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例 9 | 10:0 | 6.7 | 1 | 0.5 |
| 実施例15 | 8:2 | 7. 1 | 1 2 | 5. 3 |
| 実施例16 | 5 : 5 | 6.6 | 9 | 4.3 |
| 実施例17 | 2:8 | 6.5 | 8 | 3. 9 |
| 比較例10 | 0:10 | 5. 2 | 0.6 | 0.4 |

*) 20mA/cm²駆動時

[0122] [表6]

表 6

| 衣 0 | | | | |
|-------|------------|-----|-------------|--------|
| | BAlq: CDBP | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例11 | 10:0 | 1 2 | 2.4 | 0.6 |
| 実施例18 | 8:2 | 1 3 | 3. 3 | 0.8 |
| 実施例19 | 5 : 5 | 1 0 | 1.8 | 0.6 |
| 実施例20 | 2:8 | 1 0 | 1.3 | 0.4 |
| 比較例12 | 0:10 | 9 | 1. 2 | 0.4 |

*) 20mA/cm²駆動時

[0123] [表7]

表 7

| 12 1 | | | | |
|-------|-----------|------|--------|--------|
| | BAlq: NPD | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| 1 | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例13 | 10:0 | 1 2 | 2.4 | 0.6 |
| 比較例14 | 8:2 | 14.5 | 2. 1 | 0.5 |
| 比較例15 | 5 : 5 | 1 7 | 2. 0 | 0.4 |
| 比較例16 | 2:8 | 1 1 | 2. 4 | 0.7 |
| 比較例17 | 0:10 | 8.8 | 3. 2 | 1.1 |

*) 20mA/cm²駆動時

[0124] [表8]

表8

| 衣も | | | | |
|-------|------------|------|--------|--------|
| | BAlq: CDBP | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例18 | 10:0 | 5. 5 | 2. 0 | 1. 1 |
| 実施例21 | 9.5:0.5 | 5. 9 | 2. 4 | 1. 3 |
| 実施例22 | 8:2 | 6.4 | 3. 3 | 1. 6 |
| 実施例23 | 2:8 | 7.0 | 1. 5 | 0.7 |
| 実施例24 | 0.5:9.5 | 6.0 | 1. 5 | 0.8 |
| 比較例19 | 0:10 | 5.9 | 1. 2 | 0.6 |

^{*) 20}mA/cm²駆動時

[0125] [表9]

表 Q

| 表 9 | | | | | |
|---------------|---------|-----------|------|--------|--------|
| | ドーパント比率 | BAlq: NPD | 電圧 | 電流効率 | 電力効率 |
| } | | (重量比) | (V) | (cd/A) | (lm/W) |
| 比較例20 | 0.5 | 10:0 | 6.9 | 2. 0 | 0.9 |
| 実施例25 | 0.5 | 9.5:0.5 | 8. 5 | 3.1 | 1.1 |
| 実施例26 | 0.5 | 9:1 | 8.3 | 3. 1 | 1. 2 |
| 実施例27 | 0.5 | 8.5:1.5 | 8.0 | 2.8 | 1. 1 |
| 実施例28 | 0.5 | 8:2 | 7.8 | 2. 7 | 1, 1 |
| 比較例1 | 1 | 10:0 | 7. 1 | 1. 9 | 0.8 |
| 実施例1 | 1 | 9:1 | 9.6 | 2. 9 | 0.9 |
| 実施例 2 | 1 | 8:2 | 9. 1 | 2.8 | 1.0 |
| 比較例21 | 2 | 10:2 | 7.3 | 1.6 | 0.7 |
| 実施例29 | 2 | 9.5:0.5 | 8.3 | 1. 7 | 0.6 |
| 実施例30 | 2 | 9:1 | 10.1 | 1. 9 | 0.6 |
| 実施例31 | 2 | 8.5:1.5 | 10 | 2. 0 | 0.6 |
| 実施例32 | 2 | 8:2 | 9.8 | 1.8 | 1.6 |
| 75 NP 17 10 D | | <u> </u> | 1 | | |

^{*) 20}mA/cm²駆動時

- [0126] 表5に示した実施例15~17及び比較例9,10の結果より、HOMOのエネルギー値が同等(ΔE =0.12eV<0.15eV)で、LUMOのエネルギー値が異なる(ΔE =0.33eV>0.15eV)ように構成されたCBPとTAZの混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子では、CBPをホスト材料とした有機発光層を持つ有機EL素子(比較例9)やTAZをホストと材料した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例9)やTAZをホストと材料した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例10)と比較して、高電圧化していることが分かる。この結果より、ホスト材料としてLUMOのエネルギー値が異なる材料を混合させることにより、互いの材料がトラップサイトを形成する、あるいはエネルギー障壁となって、有機発光層における電子の移動度を低下させたものと考えることができる。電子の移動度を調整することにより再結合効率が高くなり、実施例15では12cd/Aに高効率化していることが分かる。
- [0127] 表6に示した実施例18~20及び比較例11,12の結果より、IIOMOのエネルギー値が同等(ΔΕ HOMO = 0.12eV < 0.15eV)で、LUMOのエネルギー値が異なる(ΔΕ = 0.44eV > 0.15eV)ように構成されたBAlqとCDBPの混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子では、BAlqをホスト材料とした有機発光層を持つ有機EL素子(比較例11)やCDBPをホストと材料した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例12)と比較して、高電圧化していることが分かる。この結果より、ホスト材料としてLUMOのエネルギー値が異なる材料を混合させることにより、互いの材料がトラップサイトを形成する、あるいはエネルギー障壁となって、有機発光層における電子の移動度を低下させたものと考えることができる。電子の移動度を調整することにより再結合効率が高くなり、実施例18では3.3cd/Aに高効率化していることが分かる。
- [0128] 表7に示した比較例13~17の結果より、HOMOのエネルギー値が異なり(ΔE_{HOM} = 0. 36eV > 0. 15eV)で、LUMOのエネルギー値も異なる(ΔE_{LUMO} = 0. 41eV > 0. 15eV)ように構成されたBAlqとNPDの混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例14~16)では、HOMOのエネルギー値が同等で、LUMOのエネルギー値が異なるように構成された混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子(例えば実施例18等)に比較して、パントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子(例えば実施例18等)に比較して、

また、BAlqをホスト材料とした有機発光層を持つ有機EL素子(比較例13)やCDBPをホストと材料した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例17)と比較して、高電圧化しているが電流効率は小さくなっていることが分かる。この結果より、ホスト材料としてHOMOとLUMOの両方のエネルギー値が異なる材料を混合させた場合は、両方のキャリア移動度の調整が上手くいかない、あるいはNPDのLUMOとBAlqのHOMOの相互作用によるエキサイマー形成により発光性ドーパントでの再結合効率が低くなり、効率が低くなることが分かる。

- [0129] 表8に示した実施例21~24及び比較例18,19の結果より、HOMOのエネルギー値が異なり(ΔΕ =0.39eV>0.15eV)、LUMOのエネルギー値が同等である(ΔΕ =0.03eV<0.15eV)ように構成されたTPDとPVKの混合薄膜に発光性ドーパントを添加した有機発光層を持つ有機EL素子では、TPDをホスト材料とした有機発光層を持つ有機EL素子(比較例18)やPVKをホストと材料した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例18)やPVKをホストと材料した有機発光層を持つ有機EL素子(比較例19)と比較して、高電圧化していることが分かる。この結果より、ホスト材料としてHOMOのエネルギー値が異なる材料を混合させることにより、互いの材料がトラップサイトを形成する、あるいはエネルギー障壁となって、有機発光層における電子の移動度を低下させたものと考えることができる。なお、特許文献2に記載の有機発光層ではPVKにTPDが少量混合された例(本願の実施例24の比率と同じもの)が紹介されているが、本願ではむしろTPDにPVKを含有させた上記実施例22の条件で高効率化していることが分かる。
- [0130] 表9に示した実施例1, 2, 25~32及び比較例1, 20, 21の結果より、配合割合が少ない方のホスト材料であるTNATAの重量比に対し、発光性ドーパントの割合が少ない有機EL素子ほど、高効率化していることが分かる。実際は、発光性ドーパントもトラップサイトになりうるために、ドーパント濃度によりキャリアのバランスは変化をするが、ドーパント濃度を高くすると、一般的に知られているように濃度消光により発光効率は減少する。しかし、本願の方法では、発光性のドーパント濃度を最適に保持した状態でキャリアトラップ濃度を制御することができる。表9の結果から、ドーパントの比率が0.5でTNATAの重量比が1のとき、電力効率が1.2lm/W(実施例26)と高く、ドーパントの比率が1でTNATAの比率が2のときも、電流効率が1.0lm/W(

実施例2)と高い。この結果から、混合するホスト材料のうち少ない方のホスト材料であるTNATAの混合割合は、発光性ドーパントの濃度の2倍以上が好ましいことが分かる。

- [0131] 以上の結果から、有機発光層を塗り分け形成して、正孔阻止層、電子輸送層、電子注入層、陰極をすべての色で共通化してパネルを作製する場合(例えば図4や図6を参照)、パネルの消費電力を抑えるために、最適値を調整して有機発光層を構成する2種以上のホスト材料の混合比を選択すればよい。
- [0132] 例えば、BDAVBiを発光性ドーパントとして青色発光する有機発光層と、Ir(ppy) 2acadcを発光性ドーパントとして緑色発光する有機発光層の上に、正孔阻止層にB Alqを用いてカソード層構成を共通化する場合(実施例1~6、比較例1,2、実施例9~11、比較例5,6、図5、図7等を参照)、有機発光層は、実施例2の1.0lm/Wと実施例11の2.8lm/Wの組み合わせで用いるのが好ましいことが分かる。このことは、TPDのみをホスト材料とした場合の0.8lm/W(比較例1)及び1.8lm/W(比較例5)と比較して、パネルの電力効率が向上していることが分かる。
- [0133] 同様に、BDAVBiを発光性ドーパントとして青色発光する有機発光層と、Ir(ppy) 2acadcを発光性ドーパントとして緑色発光する有機発光層の上に、正孔阻止層にB CPを用いてカソード層構成を共通化する場合(実施例7,8、比較例3,4、実施例1 2~14、比較例7,8、図5,図7等を参照)、有機発光層は、比較例3の1.1lm/W と実施例12の2.1lm/Wを組み合わせで用いるのが好ましいことが分かる。このことは、CBPのみをホスト材料とした場合の1.1lm/W(比較例3)及び1.6lm/W(比較例7)と比較して、パネルの電力効率が向上していることが分かる。
- [0134] 同様に、BDAVBiを発光性ドーパントとして青色発光する有機発光層と、Ir(ppy) 2acadcを発光性ドーパントとして緑色発光する有機発光層と、Ir(piq)3の上を発光性ドーパントとして赤色発光する有機発光層の上に、正孔阻止層にBCPを用いてカソード層構成を共通化する場合、有機発光層は、比較例3の1.1lm/Wと実施例12の2.1lm/Wと実施例18の0.8lm/Wを組み合わせで用いるのが好ましいことが分かる。このことは、単一のホスト材料の場合と比較して、パネルの電力効率が向上していることが分かる。

図面の簡単な説明

[0135] [図1]本発明の有機EL素子の基本的な素子構造を示す模式断面図である。

[図2]有機EL素子を構成する主要な層の基本的なエネルギーダイアグラムの模式図である。

[図3]有機発光層を構成する2種の化合物のHOMOとLUMOの形態を示すエネルギーダイアグラムの模式図であり、図3(A)はHOMOのエネルギー値が異なる化合物を併用した場合を示し、図3(B)はLUMOのエネルギー値が異なる化合物を併用した場合を示している。

[図4]本発明の有機EL素子のRGBの一形態を示す模式断面図である。

[図5]本発明の有機EL素子のRGBの他の形態を示す模式断面図である。

[図6]本発明の有機EL素子のRGBのさらに他の形態を示す模式断面図である。

[図7]本発明の有機EL素子のRGBのさらに他の形態を示す模式断面図である。

[図8]各色の発光層上に形成した正孔阻止層を平面視した形態を示す模式平面図である。

符号の説明

- [0136] 1 有機EL素子
 - 2 基板
 - 11 陽極
 - 12 正孔注入層
 - 13 正孔輸送層
 - 14 発光層
 - 15 正孔阻止層
 - 16 電子輸送層
 - 17 電子注入層
 - 18 陰極
 - 19 隔壁

請求の範囲

[1] 陽極と陰極との間に有機発光層が配置された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機発光層は、LUMO(最低空軌道)のエネルギー値が同じ又は略同じでHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

[2] 陽極と陰極との間に有機発光層が配置された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、

前記有機発光層は、HOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が同じ又は略同じで LUMO(最低空軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性 化合物であるドーパントとを含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

- [3] 前記ホスト材料と前記ドーパントとが低分子化合物である、請求項1又は2に記載の 有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [4] 前記少なくとも2種のホスト材料のうち、含有量が少ない方のホスト材料は、前記ドーパントの含有量の2倍以上の含有量で含まれる、請求項1~3のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [5] 前記HOMO又はLUMOのエネルギー値が同じ又は略同じ少なくとも2種のホスト 材料において、該エネルギー値の差が±0.15eVよりも小さく、

前記LUMO又はHOMOのエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料において、該エネルギー値の差が0.15eV以上0.60eV以上である、請求項1~4のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

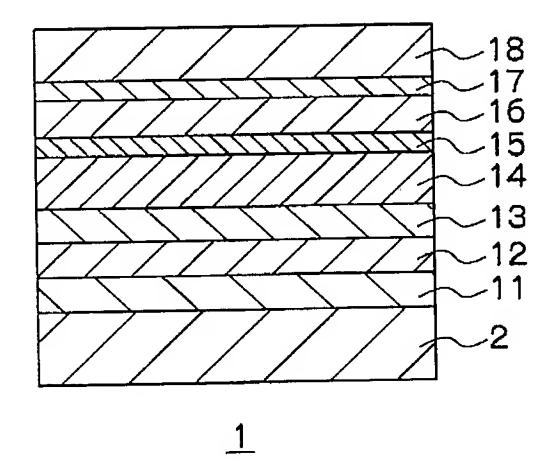
- [6] 前記少なくとも2種のホスト材料のうち、含有量が多い方のホスト材料のみをホスト材料とする素子よりも、前記少なくとも2種のホスト材料を含有する素子の方が駆動電圧が高電圧化する、請求項1~5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [7] 前記有機発光層と前記陰極との間に、正孔阻止層と電子輸送層とがその順に設けられている、請求項1~6のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

- [8] 前記正孔阻止層と前記電子輸送層とが、R(赤)G(緑)B(青)の各色を発光する有機発光層領域のうち2色以上の領域を覆うように形成されている、請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。
- [9] 陽極と陰極との間に有機発光層が配置された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法であって、

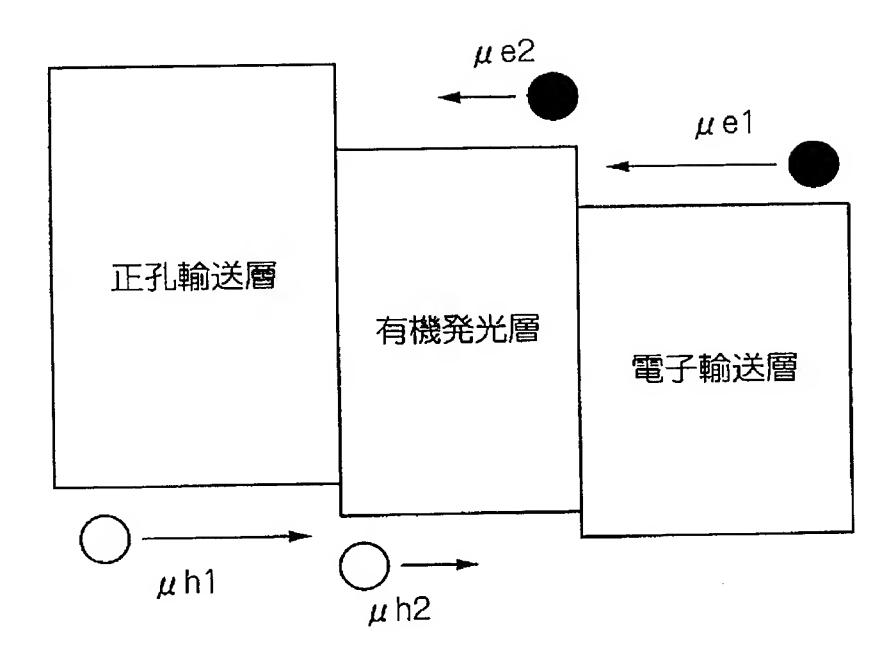
前記有機発光層の形成工程は、LUMO(最低空軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料又はHOMO(最高被占軌道)のエネルギー値が同じ若しくは略同じでLUMO(最低空軌道)のエネルギー値が異なる少なくとも2種のホスト材料と、発光性化合物であるドーパントとを含む有機発光層形成材料を塗布して行うことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

- [10] 前記有機発光層と前記陰極との間に、正孔阻止層と電子輸送層とをその順に塗布 形成する、請求項9に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。
- [11] 前記正孔阻止層と前記電子輸送層とを、R(赤)G(緑)B(青)の各色を発光する有機発光層領域のうち2色以上の領域を覆うように塗布形成する、請求項10に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法。

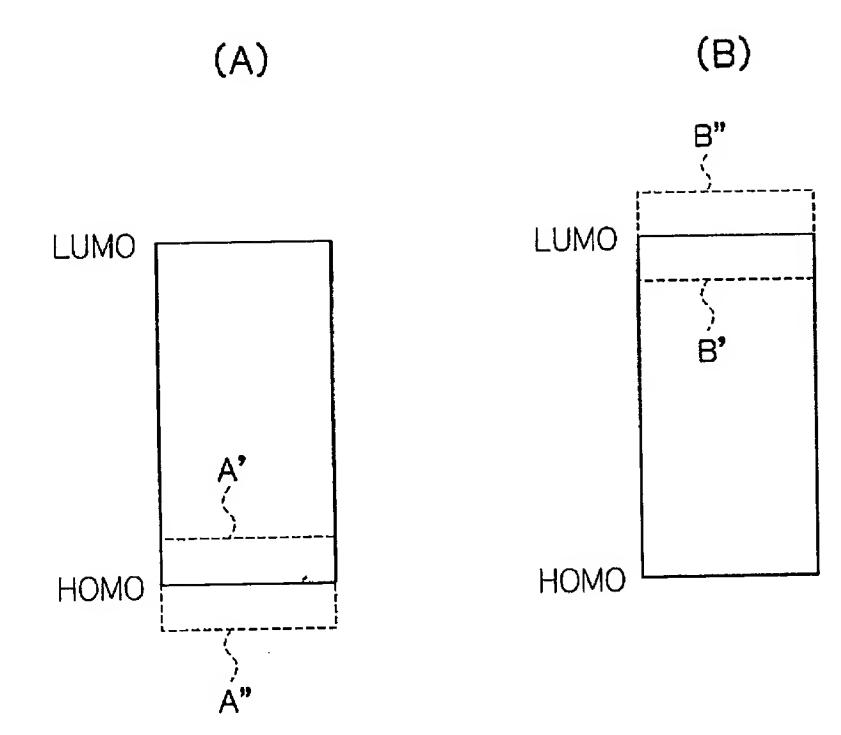
[図1]



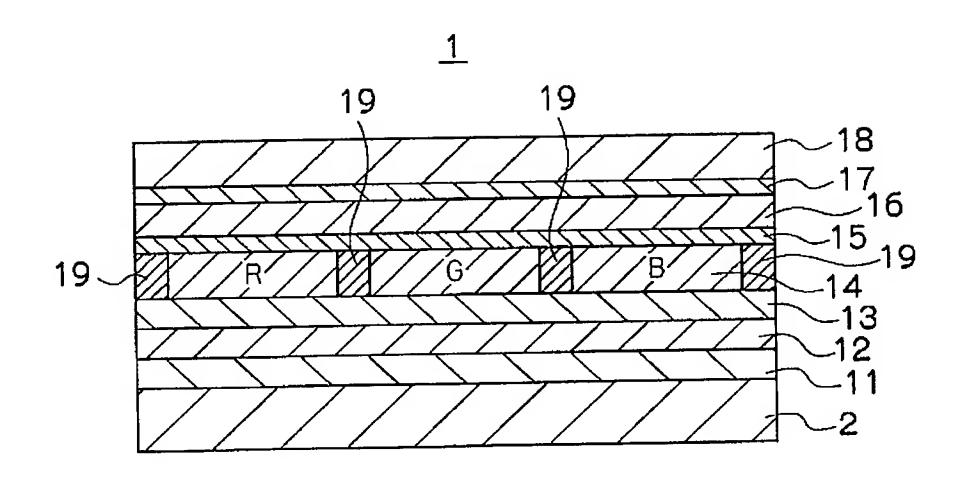
[図2]



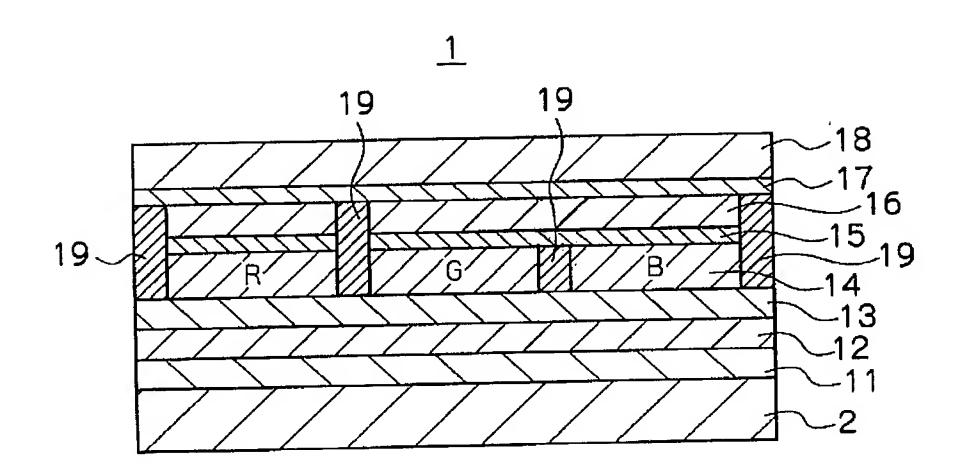
[図3]



[図4]

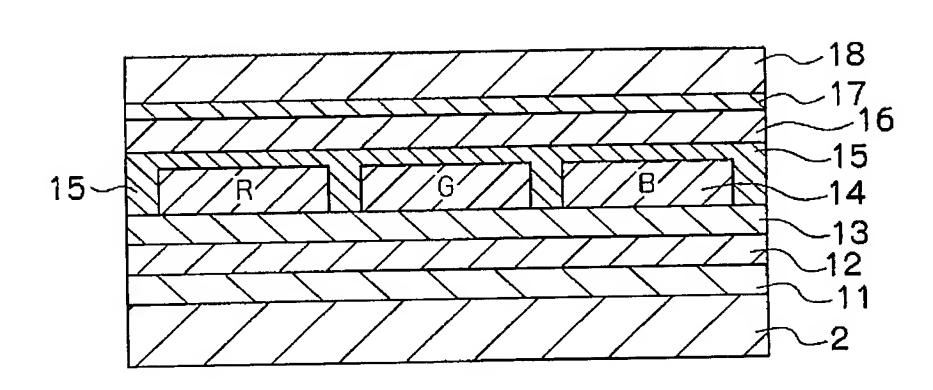


[図5]

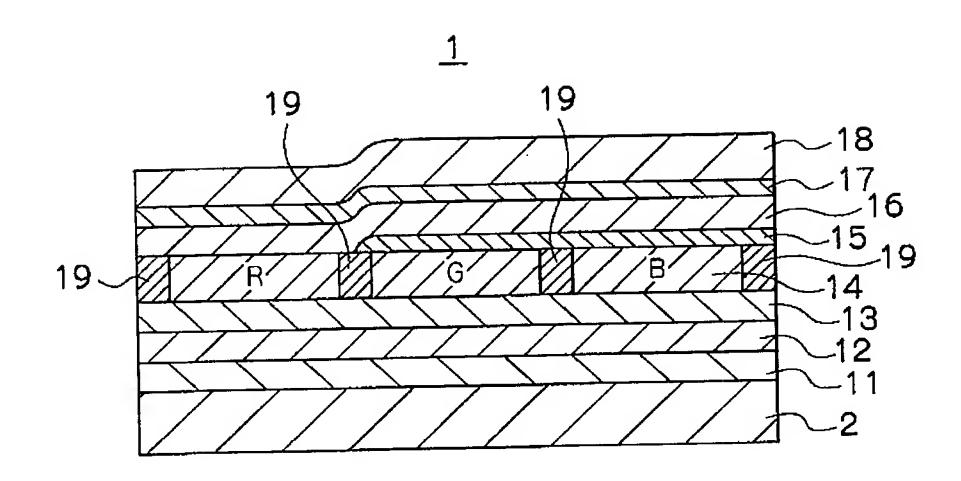


[図6]

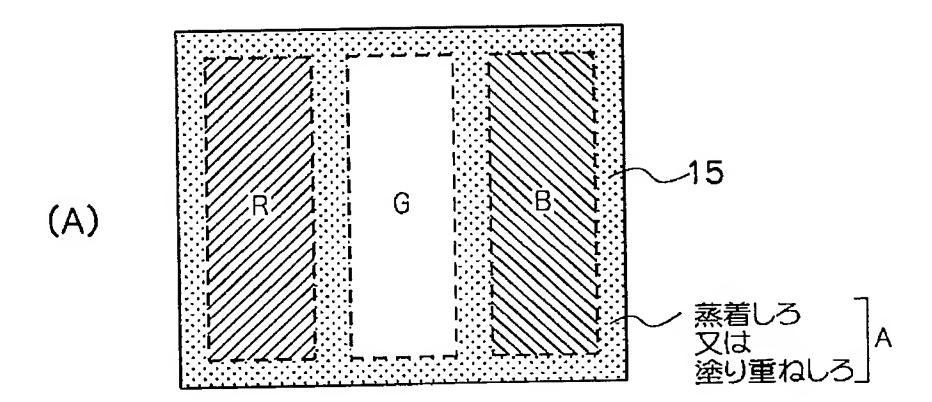
1

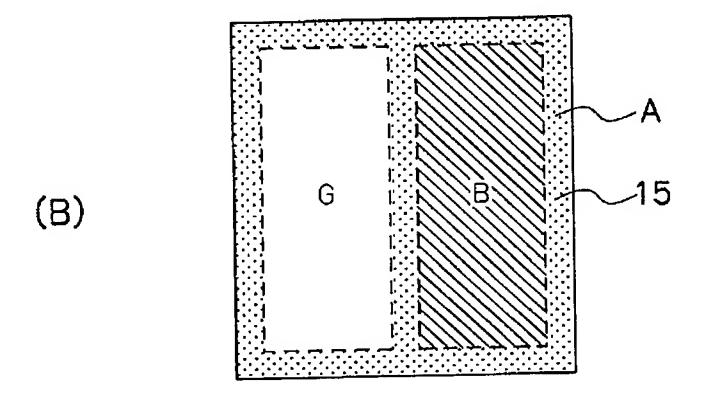


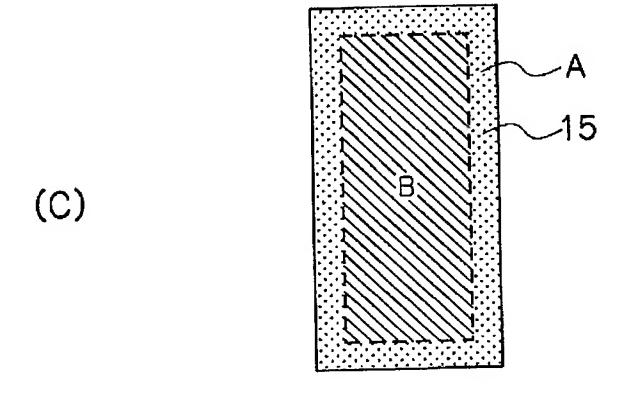
[図7]



[図8]







INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/056077

| A. CLASSIFICA H01L51/50(| TION OF SUBJECT MATTER (2006.01) i, H05B33/10(2006.01) i | , H05B33/12(2006.01)i | |
|--|---|--|--|
| According to Inter | rnational Patent Classification (IPC) or to both national o | classification and IPC | |
| B. FIELDS SEA | ARCHED | | |
| Minimum docume H01L51/50, | entation searched (classification system followed by class H05B33/10, H05B33/12 | sification symbols) | |
| Jitsuyo Kokai Ji | tsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toro | oku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2008 |
| Electronic data backets (CAplus (| ase consulted during the international search (name of days (STN) REGISTRY (STN) | ata base and, where practicable, search | terms assay |
| C. DOCUMEN | ITS CONSIDERED TO BE RELEVANT | | T |
| Category* | Citation of document, with indication, where appr | | Relevant to claim No. |
| X Y | JP 2007-251097 A (Konica Mino Inc.), 27 September, 2007 (27.09.07) Claim 1; Par. Nos. [0011], [0 [0065], [0084], [0190], table table 2; Par. No. [0206], tab [0207], table 4; Par. No. [02 (Family: none) | , 057], [0062], 1; Par. No. [0198], le 3 to Par. No. | 1-7 |
| X | JP 2006-135295 A (Samsung SD: 25 May, 2006 (25.05.06), Claim 1; Par. No. [0082], exa [0086], [0100], table 1 & US 2006/0099447 A1 & EP & KR 10-2006-0040829 A & KR1 & CN 1773744 A | mple 1 to Par. Nos. 1656000 Al | 2-7 8-11 |
| × Further d | ocuments are listed in the continuation of Box C. | See patent family annex. | |
| * Special cate "A" document d be of particul "E" earlier appl date "L" document r cited to est special reas "O" document r document r priority dat | regories of cited documents: defining the general state of the art which is not considered to ular relevance ication or patent but published on or after the international filing which may throw doubts on priority claim(s) or which is tablish the publication date of another citation or other con (as specified) referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means oublished prior to the international filing date but later than the | "Y" document of particular relevance; the considered novel or cannot be consisted with one or more other such being obvious to a person skilled in the "&" document member of the same patent." Date of mailing of the international seems o | claimed invention cannot be dered to involve an inventive claimed invention cannot be step when the document is documents, such combination e art family |
| 09 Apr | ril, 2008 (09.04.08) ling address of the ISA/ | 22 April, 2008 (2: | 2.04.08) |
| Japane | ese Patent Office | Telephone No. | |
| Facsimile No. | | | |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/056077

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| Y | JP 2004-355975 A (Sony Corp.), 16 December, 2004 (16.12.04), Claim 6; Par. Nos. [0034], [0036] to [0037] (Family: none) | 8 |
| Y | JP 2002-260858 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 13 September, 2002 (13.09.02), Par. Nos. [0025] to [0026], [0028] to [0029], [0038] to [0041]; Fig. 2 (Family: none) | 8 |
| Y | JP 2003-151769 A (Konica Corp.), 23 May, 2003 (23.05.03), Claim 16; Par. Nos. [0121] to [0122] & US 2003/0076032 A1 & EP 1289015 A2 & KR 10-2003-0019897 A | 8-11 |
| A | JP 2006-287218 A (Samsung SDI Co., Ltd.), 19 October, 2006 (19.10.06), Claims 1, 3; Par. No. [0052], example 1 to Par. Nos. [0056], [0059], example 4; Par. No. [0065], table 1 & JP 2006-287218 A & US 2006/0222888 A1 & EP 1717875 A1 & KR10-2006-0104670 A & CN 1881649 A | 1-11 |
| A | <pre>JP 2006-269447 A (Nippon Seiki Co., Ltd.), 05 October, 2006 (05.10.06), Claim 3; Par. No. [0016] (Family: none)</pre> | 1-11 |
| A | <pre>JP 2006-210747 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 10 August, 2006 (10.08.06), Claim 1; Par. Nos. [0045] to [0048], [0065], table 1, example 6; Par. No. [0069] (Family: none)</pre> | 1-11 |
| A | JP 2007-150191 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 14 June, 2007 (14.06.07), Claims; Par. No. [0039], table 1, examples (Family: none) | 1-11 |

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (April 2007)

発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC)) Α.

Int.Cl. H01L51/50 (2006. 01) i, H05B33/10 (2006. 01) i, H05B33/12 (2006. 01) i

調査を行った分野 В.

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int.Cl. H01L51/50, H05B33/10, H05B33/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1922-1996年

日本国公開実用新案公報

1971-2008年

日本国実用新案登録公報

1996-2008年

日本国登録実用新案公報

1994-2008年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAplus (STN) REGISTRY (STN)

関連すると認められる文献

| り 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|----------------------|---|------------------|
| X Y | JP 2007-251097 A(コニカミノルタホールディングス株式会社)2007.09.27,請求項1,[0011],[0057],[0062],[0065],[0084],[0190]【表1】,[0198]【表2】,[0206]【表3】~[0207]【表4】,[0213]【表5】(ファミリーなし) | 1-7 8-11 |
| X Y | JP 2006-135295 A(三星エスディアイ株式会社)2006.05.25,請求項1,[0082]実施例1~[0086],[0100]【表1】 | 2-7 8-11 |

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す \$ O
- E」国際出願目前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用す る文献 (理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09.04.2008

国際調査報告の発送日

22.04.2008

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)

郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 特許庁審査官 (権限のある職員)

9607 20

磯貝 香苗

電話番号 03-3581-1101 内線 3 2 7 1

| ン (続き). 川用文献の | 関連すると認められる文献 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|---------------|---|------------------|
| カテゴリー* | & US 2006/0099447 A1 & EP 1656000 A1 & KR 10-2006-0040829 A & KR 10-2006-0059321 A & CN 1773744 A | |
| Y | JP 2004-355975 A(ソニー株式会社)2004.12.16,請求項6,[0034],[0036]~[0037](ファミリーなし) | 8 |
| Y | JP 2002-260858 A(松下電器株式会社)2002.09. 13,[0025]~[0026],[0028]~[0029],[0038]~[0 041],【図2】 (ファミリーなし) | 8 |
| Y | JP 2003-151769 A(コニカ株式会社)2003.05.2 3,請求項16,[0121]~[0122] & US 2003/0076032 A1 & EP 1289015 A2 & KR 10-2003-0019897 A | 8-11 |
| Λ | JP 2006-287218 A(三星エスディアイ株式会社)2006.10.19,請求項1,請求項3,[0052]実施例1~[0056],[0059]実施例4,[0065]【表1】 & JP 2006-287218 A & US 2006/0222888 A1 & EP 1717875 A1 & KR 10-2006-0104670 A & CN 1881649 A | 1-11 |
| A | JP 2006-269447 A(日本精機株式会社)2006.10. 05,請求項3,[0016] (ファミリーなし) | 1-11 |
| A | JP 2006-210747 A(三洋電機株式会社)2006.08. 10,請求項1,[0045]~[0048],[0065]【表1】実施例6, [0069] (ファミリーなし) | 1-11 |
| A | JP 2007-150191 A(三洋電機株式会社)2007.06. 14,特許請求の範囲,[0039]【表1】実施例 (ファミリーなし) | 1-11 |
| | | |
| | | |
| | | |